

KREUZSTRAHLEXPERIMENT ZUR ABREGUNG VON
 $\text{Na}^* (3^2\text{P}_{3/2}, F=3, M_F) \rightarrow \text{Na} (3^2\text{S}_{1/2})$
IN NIEDERENERGETISCHEN STÖßEN MIT Na^+

INAUGURAL-DISSERTATION
zur Erlangung der Doktorwürde
der Freien Universität Berlin
Fachbereich Physik

vorgelegt von
Enno Meyer
aus Frankenthal/Pfalz

1984

Digitized by the Internet Archive
in 2026

KREUZSTRAHLEXPERIMENT ZUR ABREGUNG VON
 $\text{Na}^* (3^2\text{P}_{3/2}, F=3, M_F) \rightarrow \text{Na} (3^2\text{S}_{1/2})$
IN NIEDERENERGETISCHEN STÖßEN MIT Na^+

INAUGURAL-DISSERTATION
zur Erlangung der Doktorwürde
der Freien Universität Berlin
Fachbereich Physik

vorgelegt von
Enno Meyer
aus Frankenthal/Pfalz

1984

1. Referent: Prof. Dr. I.V. Hertel
2. Referent: Prof. Dr. N. Stolterfoht

Tag der letzten mündlichen Prüfung: 23.Nov.84

Ein Großteil der Ergebnisse dieser Arbeit wurde inzwischen veröffentlicht:

"Preparation of Molecular States in an Ion-Atom Crossed-Beam Scattering Experiment by Laser Excitation" H.Schmidt, A.Bähring, E.Meyer and B.Miller, Phys.Rev.Lett.48(1982)1008

"Evolution of Molecular States Studied in Collisions of Ions with Laser Excited Atoms by a Crossed Beam Experiment", A.Bähring, I.V.Hertel, E.Meyer and H.Schmidt, Z.Phys.A. 312(1983)293

"Coherence Effects in Low Energy $\text{Na}^*(3P) + \text{Na}^+$ Scattering: Experiment and Semiclassical Calculations", A.Bähring, E.Meyer, I.V.Hertel and H.Schmidt, Z.Phys.A. 320(1985)141

INHALTSVERZEICHNIS:

Seite

1.	EINLEITUNG	1
2.	DAS EXPERIMENT	
2.1	Übersicht	4
2.2	Der Natriumionenstrahl und die Ionenoptik	7
2.3	Der Natriumatomstrahl	11
2.4	Der Laser und die optische Strahlaufbereitung	13
2.5	Der Fluoreszenzdetektor	16
2.6	Datenerfassung und Steuerung des Experiments	18
2.6.1	Nachweiselektronik	19
2.6.2	Fluoreszenzelektronik	20
2.6.3	Lichtlogik	21
2.6.4	Prozeßsteuerung	23
2.7	Die Messverfahren	24
3.	GRUNDLAGEN DER STREUTHEORIE	
3.1	Einleitung	26
3.2	Quantenmechanische Formulierung des Streuproblems und die Born-Oppenheimer Näherung	28
3.3	Die Na_2^+ Potentiale	32
3.4	Die Semiklassische Näherung	40
3.5	Der Alignmentwinkel γ und die Orientierung P_3 im Streuprozeß	51
4.	THEORIE DER MESSUNG	
4.1	Einführung	53
4.2	Der optische Pumpprozeß	55
4.3	Zusammenhang zwischen Streurate und Dichtematrix des stoßinduzierten Zustandes	60

5.	DER ÜBERGANG $3^2P_{3/2} \rightarrow 3^2S_{1/2}$ MESSERGEGNISSE UND DISKUSSION	
5.1	Einleitung	69
5.2	Differentielle Streuquerschnitte	71
5.2.1	Der molekulare Übergang $1\Pi_u - 1\Sigma_u$ im Na_2^+	71
5.2.2	Winkelverteilungen und Energieabhängigkeiten des superelastischen und des inelastischen Übergangs	75
5.3	Polarisationsstudien	82
5.3.1	Asymptotische Präparation atomarer Orbitale, das Koordinatensystem	83
5.3.2	Lineare Polarisationsabhängigkeiten	86
5.3.3	Der Alignmentwinkel γ und der Einkoppelradius R_L	90
5.3.4	Die zirkuläre Polarisation und die Orientierung P_3	96
5.3.5	Die Dichtematrix des 3P-Zustandes	102
6.	ZUSAMMENFASSUNG	110
	ANHANG	112
	LITERATURVERZEICHNIS	119

1. EINLEITUNG

Durch den Einsatz neuer experimenteller Techniken wie dem Koinzidenzverfahren und der Streuung an laseroptisch gepumpten Atomen ist ein detaillierter Einblick in die Dynamik der Schwerteilchenstreuung möglich geworden. Die durch Stoß induzierten Besetzungsamplituden magnetischer Unterniveaus und ihre relativen Phasen zueinander sind experimentell mit diesen Verfahren zugänglich.

Im Gegensatz dazu ist es für ein "klassisches" Streuexperiment nur möglich Mittelungen über die Besetzung der Unterniveaus zu bestimmen und es können keine Phaseninformationen gewonnen werden.

Dieses expandierende Arbeitsfeld wird durch die Schlagworte "Kohärenz" und "Alignment und Orientierung" bei Stößen charakterisiert.

Die Koinzidenzmethode wurde von Macek und Jaecks /MJ71/ vorgeschlagen und erste Experimente wurden von Kleinpopp /EASK73/ bei der Streuung von Elektronen an Helium durchgeführt. Weitere Streuexperimente an Ion-Atom, Atom-Atom und Atom-Molekül Systemen folgten /HMWK83/, /AN83/. Die Methode der Streuung an laseroptisch angeregten Atomen wurde von Hertel-Macek /MH74/ entwickelt und von Hertel-Stoll in der Elektronenstreuung an angeregtem Natrium erprobt /HS74/. Hermann-Hertel /HeH82b/ gelang erstmals die vollständige Dichtematrix von Na(3P) in einem niederenergetischen Elektronenstreuexperiment zu bestimmen und damit die experimentellen Grundlagen für diese Untersuchung zu schaffen. Reiland-Hertel untersuchten Alignment und Orientierungseffekte bei dem Energietransferprozeß



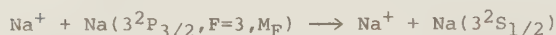
der ein Beispiel eines photochemischen Elementarprozesses ist. Es wurde untersucht ob der Transfer elektronischer Anregungsenergie in Vibrations-Rotationsenergie des N_2 -Moleküls von der Polarisation des anregenden Lichts abhängt.

In dieser Arbeit soll ein grundlegender Aspekt der Photochemie studiert werden.

"Welche Modelle beschreiben die Bildung eines Moleküls in einem niederenergetischen Stoß zweier Atome?"

Zur Untersuchung der Frage muß man ein einfaches Modellsystem wählen, daß sowohl für den Experimentalphysiker als auch für den Theoretiker leicht zu handhaben ist.

Wir betrachten den Stoßprozeß



bei niedrigen Energien ($15\text{eV} \leq E_{\text{cm}} < 50\text{eV}$). Die Möglichkeiten und die Unzulänglichkeiten des Modells eines Quasimoleküls werden in einem Comment von Salin diskutiert /Sa80/.

Die Vorzüge des Na_2^+ -Systems sind klar erkennbar:

Die Erzeugung eines intensiven Na-Atomstrahls bzw. Na^+ -Ionenstrahls sind relativ problemlos und die experimentellen Techniken sind erprobt. Zur optischen Anregung gibt es kommerzielle Single-Mode Lasersysteme, deren Frequenz über lange Zeit stabil ist und in einem Kreuzstrahlexperiment sind Einzelstoßbedingungen gewährleistet.

Das Modellsystem Na_2^+ besteht aus nur einem Valenzelektron und zwei abgeschlossenen Rumpfen und ähnelt damit dem ionischen Wasserstoffmolekül H_2^+ . Man kann das System laser-optisch anregen und damit atomare Ladungsverteilungen im Raum präparieren.

An diesem einfachen System können eine Reihe von grundlegenden Fragen studiert werden:

Gibt es einen nichtadiabatischen Übergang vom angeregten Zustand zum Grundzustand? Welche Kopplung bewirkt den Übergang und wo liegt der Kreuzungspunkt?

Wie entwickeln sich diese atomaren Orbitale in Molekülzustände; wo findet der Übergang vom raumfesten atomaren Koordinatensystem in das rotierende molekulare System statt? Bleibt die Reflexionssymmetrie bezüglich der Streuebene in der $|L_{m_L}\rangle$ Basis erhalten oder muß man zu einer Beschreibung in $|Jm_J\rangle$ übergehen, d.h. welchen Einfluß hat der Spin auf die Streuung und werden die stoßinduzierten Zustände kohärent besetzt? In welchen Potentialbereichen werden Alignment und Orientierung beim Stoß erzeugt?

Wie gut stimmen semiklassische Streurechnungen und Experiment überein?

Mit dem oben skizzierten Experiment, bei dem Besetzungsamplituden einzelner Niveaus und ihre Phasen bestimmt werden können, kann man versuchen auf obige Fragen eine Antwort zu geben und die Qualität von adiabatischen Potentialen, Koppelementen und Streurechnungen für das Modellsystem Na_2^+ sehr empfindlich zu testen.



2. DAS EXPERIMENT

2.1 Übersicht

Die Apparatur ist ein konventionelles Ionenstoßspektrometer mit gekreuzten Strahlen zur Messung differentieller Wirkungsquerschnitte. Sie ging aus einem Elektronenstoßspektrometer, das in den Dissertationen von Stoll /S74/ und Herrmann /H79/ im einzelnen beschrieben wird, durch Umrüsten auf einen Natriumionenstrahl hervor. Durch einen Großbrand im Neubau des Fachbereichs Physik in Kaiserslautern 1978 wurde das Elektronenspektrometer sehr in Mitleidenschaft gezogen und hatte nur noch Schrottwert. Es wurde zum Reinigen total zerlegt und anschließend wieder zusammengebaut, was bei einer Apparatur dieser Größenordnung einem Neuaufbau gleichkam. Die gesamte Ausrüstung des Experiments mit Netzgeräten war nicht mehr zu gebrauchen und es mußten nach dem Umzug der Arbeitsgruppe an die Freie Universität Berlin im Frühjahr 1979 fast die gesamte elektische Ausrüstung neu beschafft und eingebaut werden. Der zur Steuerung des Experiments verwendete Prozeßrechner war ebenfalls defekt und es wurde ein neuer Rechner installiert. Im Zuge des Wiederaufbaus wurde die Apparatur zur Erzeugung des Ionenstrahls umbaut. Die räumlichen Verhältnisse in dem provisorischen Labor in der Boltzmannstrasse in Berlin waren äußerst beengt. Durch einen direkten Zugang zu einem Hof war die Luft des Labors sehr staubig, was sich negativ auf das einwandfreie Funktionieren der Lasersysteme auswirkte und deshalb Messungen nur schwer durchzuführen waren. Dies änderte sich erst nach dem erneuten Umzug der Apparatur an den endgültigen Standort im Neubau des Fachbereichs Physik der FU Berlin. Hier zeigte sie sich dann ab Januar 83 von ihrer besten Seite und funktioniert seitdem ohne größere Unterbrechungen.

Eine schematische Übersicht über die Messanordnung ist in Fig.2.a dargestellt.

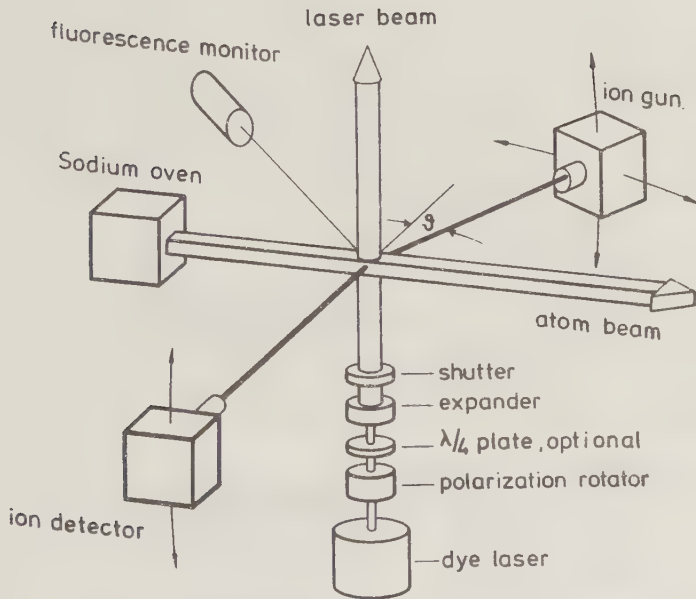


Fig.2.a Schema des Ionenstoßspektrometers

Das System besteht aus den Komponenten Streukammer mit dem dazugehörigen UHV-Vakuumsystem, Natriumionenstrahl, Natriumatomstrahl, Dylasersystem und Prozeßrechnersystem.

Die Ionenkanone und der Ionendetektor sind auf zwei Zahnkränzen unabhängig voneinander drehbar angeordnet, wobei die gemeinsame Drehachse der Natriumatomstrahl ist. Zusätzlich dazu kann die Kanone senkrecht zur Drehebene bewegt werden; man kann also verschiedene Streugeometrien realisieren. Insbesondere sind mit dieser Anordnung sowohl In-plane (Laser parallel zur Streuebene) als auch Out-of-plane Messungen (Laser senkrecht zur Streuebene) möglich.

Die Streuapparatur besteht aus zwei Kammern, die differenziell bepumpt werden. Da in der Ofenkammer der Natriumstrahl erzeugt wird, muß hier das Vakuum nicht besonders ölfrei sein. Es wird mit einer 150 l Öldiffusionspumpe erzeugt. Der Druck ist in der Größenordnung von 10^{-6} bis 10^{-7} Torr und steigt im Meßbetrieb auf 10^{-5} Torr an.

Die Hauptkammer wird mit einer 500 l Turbopumpe der Fa. Balzers bepumpt. Es wurde eine Turbopumpe gewählt um ein möglichst sauberes und ölfreies Vakuum zu erreichen. UHV-Bedingungen sind notwendig um die Ionenoptik störungsfrei betreiben zu können. Ohne größere Mühen erreicht man in der Hauptkammer Drucke von einigen 10^{-8} Torr.

Wegen der Komplexität des Experimentes erfolgt die Datenerfassung, Steuerung und Auswertung mit Hilfe eines Prozeßrechners 621/X2 der Firma Dietz und einem dazugehörigen CAMAC-System.

In den folgenden Kapiteln werden die einzelnen Komponenten beschrieben, wobei, wenn sinnvoll, nur eine kurz Darstellung gegeben und ansonsten auf die Originalarbeiten verwiesen wird.

2.2 Der Natriumionenstrahl und die Ionenoptik

In diesem Kapitel werden der Ionenstrahl und die damit zusammenhängenden Komponenten vorgestellt (Fig.2.b).

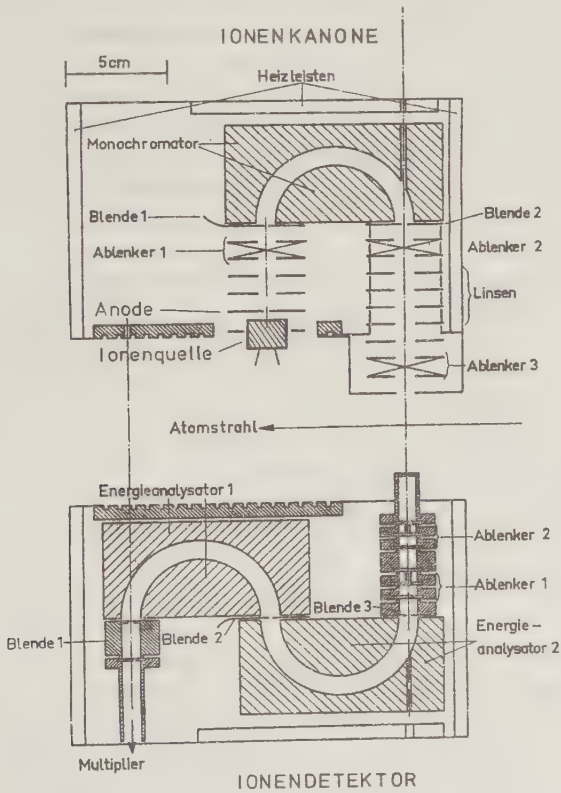


Fig.2.b Ionenkanone und Ionennachweis

Der Natriumionenstrahl wird mit Hilfe einer kommerziellen Ionenquelle der Firma Spectra Mat Inc. erzeugt, die nach dem Prinzip der thermischen Oberflächenionisation arbeitet /HR68/. Von bestimmten Alkali-Aluminium Silikaten ($\text{Na}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$ β -Eukriptit) ist bekannt, daß sie bei Temperaturen oberhalb 1000°C Na^+ -Ionen emitieren. Diese Salze sind nun in einer dünnen porösen Wolframscheibe eingeschmolzen, die indirekt geheizt wird. Ab Erreichen der Mindesttemperatur treten Na^+ -Ionen aus der Wolframscheibe aus. Bei einer Heizleistung von ca. 40-50 Watt liegt die Lebensdauer einer solchen Quelle zwischen 100-250 Stunden. Zu beachten ist, daß in den ersten Betriebsstunden derartiger Ionenquellen Verunreinigungen anderer Alkaliionen auftreten, die jedoch, wie unsere Testmessungen mit einem Quadrupolmassenspektrometer ergaben, nach einer Betriebszeit von ca. 15-20 h auf unter 6% abfallen und nach 25 h verschwindend klein bzw. nicht mehr nachzuweisen sind. (siehe Tab.2.1)

Tab.2.1 Massenspektren

t/h	I(Na^{23})	I(K^{39})	I(K^{41})
3	1	1.21	0.94
14	1	0.35	<0.01
25.5	1	0.06	<0.01

Die Intensitäten sind in relativen Einheiten angegeben, wobei die Intensität von Na^{23} gleich 1 gesetzt ist.

Die von der Quelle emittierten Ionen werden durch ein angelegtes Feld abgezogen und mit einer Optik auf die Eintrittsblende eines 180° -Kugelkondensators, der zur Energieselektion dient, fokussiert. Mit Hilfe dieses Energieselektors kann die Energiebreite des Ionenstrahls kleiner als die thermische Halbwertsbreite der Quelle eingestellt werden.

Dabei ist zu berücksichtigen, daß bei kleinerer Energiebreite (= verbesserter Energieauflösung) die Gesamtintensität des Ionenstrahls abnimmt. Da die Zählraten in dem hier beschriebenen Experiment sehr gering sind (ca. 10 Ereignisse pro Sekunde im Maximum des differentiellen Wirkungsquerschnittes), wurde der Energieselektor im Wesentlichen nur zum Abschneiden der Flanken der Maxwell'schen Energieverteilung benutzt, um einen möglichst intensiven Strahl im Streuzentrum zu erhalten. Dies ist möglich, da die thermische Energieverteilung der Ionen viel kleiner (ca. 300meV Halbwertsbreite) als die Energieauflösung ist, die man braucht, um den Na(3P) - Na(3S) Übergang (2.1eV) einwandfrei von der elastischen Streuung zu trennen.

Die energieselektierten Ionen werden durch eine nachfolgende Optik, deren Eigenschaften bei Stoll /S74/ beschrieben sind, zu einem möglichst parallelen Strahl kollimiert, der im Streuzentrum einen Durchmesser von ca. 1 mm hat. Die Eintrittsblende des ersten Kugelkondensators des Ionennachweises hat einen Durchmesser von 1mm. Aus dem Verhältnis zwischen gemessenem Strom auf dieser Blende und durchgelassenem Strom in den Kugelkondensator kann man den Durchmesser des Ionenstrahls abschätzen.

Typische Daten des Natriumionenstrahls bei Primärenergien von 30 -100 eV sind:

Strom im Streuzentrum:	$I \approx 4 \cdot 10^{-9} \text{ A}$
Durchmesser im Streuzentrum:	$d \approx 1 \text{ mm}$
Energetische Halbwertsbreite:	$I \approx 100 - 120 \text{ meV}$

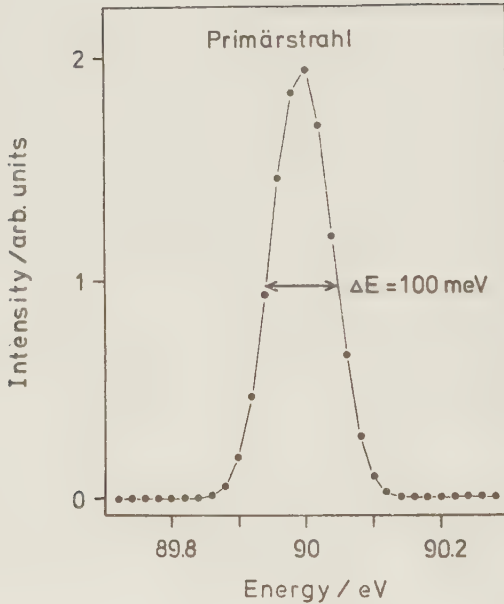


Fig.2.c Energetische Breite des Ionenstrahls

Die in einen Streuwinkel θ_{Lab} gestreuten Ionen werden durch eine Ionenoptik auf die Eingangsblende eines 180° Kugelkondensators fokussiert. Mit ihm wird die Energie der Ionen analysiert. Ein sich anschließender zweiter Kugelkondensator lenkt die Ionen richtiger Energie um und sie treffen auf einen nachfolgenden offenen Teilchenmultiplier der Fa. Balzers mit dem sie nachgewiesen werden. Der im Multiplier erzeugte Meßpuls wird über eine Nachweiselektronik, die im Kapitel 2.6 beschrieben ist, weiterverarbeitet.

2.3 Der Natriumstrahl

Der Natriumstrahl wird in einer separat bepumpten Ofenkammer erzeugt. Der dabei benutzte Ofen ist ein Recycling-Ofen, der in der Dissertation von Hermann /Her79/ ausführlich beschrieben ist. Aufgabe dieses Na-Ofens ist es, im Streuzentrum einen Atomstrahl der Dichte von 10^{11} Teilchen pro cm^3 über einen Querschnitt von einigen Millimetern zu erzeugen. Dies wird bei diesem Ofen bei einer Temperatur von ca. 430°C mit einer Ofendüse von 0.5 mm Durchmesser erreicht. Oberhalb dieser Temperatur ($>450^\circ\text{C}$) erhöht sich die Strahldichte so sehr, daß das Alignment der optisch gepumpten Atome durch "radiation trapping" zerstört wird /FiH82/. Deshalb wird der Ofen unterhalb dieser Temperatur betrieben und das optische Alignment durch einen Fluoreszenzmonitor (Kap.2.5) überwacht.

Die Dopplerbreite im Streuzentrum muß kleiner als 60 MHz sein um bei gegebener Frequenz zu gewährleisten, daß nur der Übergang $3^2\text{S}_{1/2}$ F=2 nach $3^2\text{P}_{1/2}$ F=3 im Natrium gepumpt wird. Dies wird durch eine Folge schrittweise enger werdender Blenden mit den Durchmessern $\varnothing_1 = 10\text{mm}$, $\varnothing_2 = 5\text{mm}$, und der strahldefinierenden Blende mit $\varnothing_3 = 3\text{mm}$ erreicht. Die Divergenz des Na-Strahles ist damit 1.6° und die Dopplerbreite beträgt ungefähr 50MHz.

Der große Vorteil des Na-Ofens besteht in der Möglichkeit, das während eines Meßzyklus verbrauchte Natrium zu "recyclen":

Bedingt durch den großen Natriumdurchsatz während des Meßbetriebs ist der Ofen nach einer Dauer von ca. 30h leergeschossen. Der Großteil des Natriums hat sich dabei auf die im Meßbetrieb gekühlten Kollimatorblenden niedergeschlagen.

Diese Blenden bilden ein geschlossenes System, das über ein Rücklaufrohr mit dem Ofen verbunden ist. Heizt man nun im 'Recycling'-Betrieb das Kollimatorsystem auf ca. 130°C , so verflüssigt sich das daran niedergeschlagene Natrium und es fließt über das Rücklaufrohr wieder in den Ofen zurück. Nach einer Recycling-Periode von 2 Tagen ist der Ofen wieder nahezu gefüllt und meßbereit.

2.4 Der Laser und die optische Strahlaufbereitung

Zur optischen Anregung des $3^2S_{1/2}, F=2$ nach $3^2P_{3/2}, F=3$ Übergangs im Natrium wurde ein kommerzielles Ringlasersystem der Firma Spectra-Physics benutzt. Dieses besteht aus einem Argon-Ionenlaser Mod.171, einem Ring-Dyelaser Mod.380 D und einem Frequenzstabilisierungssystem. Der schematische Aufbau ist in Fig.2.d dargestellt. Genaue Angabe über den Aufbau und die Wirkungsweise dieses Lasersystems findet man im 'Instruction Manual: Modell 380, Frequency stabilized Dye Laser'.

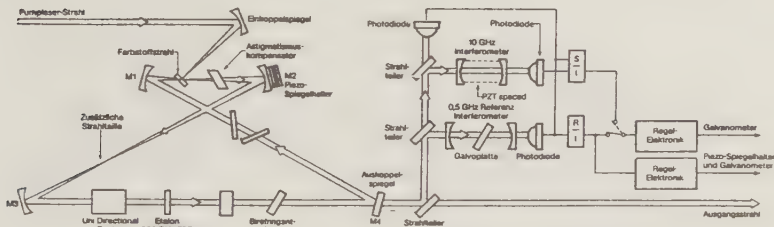


Fig.2.d Schema des Lasersystems (aus Spectra-Physics Leser-dienst)

Typische Betriebsdaten des Lasers sind:

Eine Pumplaserleistung von 4 Watt all lines des Ar^+ -Lasers ergeben ca. 400 - 500 mW Ausgangsleistung Single-mode des Dyelasers. Bei einer Wellenlänge von $\lambda = 590 \text{ nm}$ ist die effektive Linienbreite $< 1 \text{ MHz}$.

Leistungsfluktuation im Prozentbereich haben keine Auswirkungen auf das optische Pumpen, da im Sättigungsbereich

experimentiert wird. Durch das Stabilisierungssystem bleibt der Laser für Stunden auf der Sollfrequenz stehen. Die Modenstruktur und die Frequenz werden durch zwei Spektralanalyser (Fabry-Perot Interferometer) von 2 GHz und 300 GHz freier Spektralbreite überwacht.

Vor Eintritt des Laserstrahls in die Streukammer durchläuft der Laserstrahl die in Fig.2.e dargestellten optischen Komponenten:

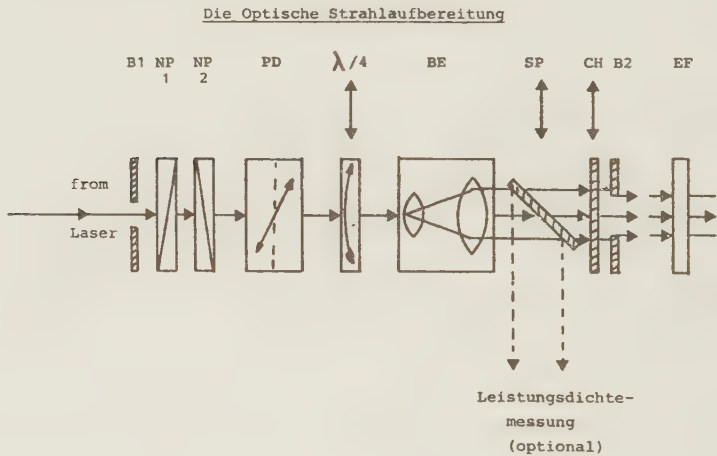


Fig.2.e Optische Strahlaufbereitung

i) Zwei Nicolprismen (Fa. Halle/ Berlin)

Mit Ihnen wird die Leistungsdichte des Lasers im Streuzentrum eingestellt und außerdem sichergestellt, daß Fehlpolarisationen unterdrückt werden, die durch Reflexion an Umlenkspiegeln o.ä. entstehen können. Das Lösungsvermögen eines Polarisationsprismas für die Fehlpolarisation beträgt nach Angaben der Herstellerfirma 10^{-6} .

ii) Polarisationsdreher (Fa. Spectra-Physics)

Er dient zum Drehen des E-Vektors des linear polarisierten Lichts und wird von einem Schrittmotor angetrieben, der über den Rechner gesteuert wird.

iii) $\lambda/4$ - Plättchen (Fa. Halle/Berlin)

Es wird zur Erzeugung von zirkular polarisiertem Licht benutzt.

iv) Einer Aufweitungsoptik (Spindler + Hoyer)

Mit ihr wird eine gleichmäßige Leistungsdichte im Streuzentrum über einen größeren Bereich (ca. 10 mm) erzeugt.

Das Eintrittsfenster der Streuapparatur muß aus spannungsfreiem Glas bestehen, da sonst Polarisationsgrad und Richtung der Polarisation des Lichts verändert werden.

Die Leistungsdichte des Lasers beträgt im Fall einer Anregung mit linear polarisiertem Licht ca. $100 - 150 \text{ mW/cm}^2$ um maximales optisches Alignment zu erhalten. Höhere Leistungsdichten führen zu einer Linienverbreiterung der Hyperfeinzustände des angeregten $\text{Na}(3P)$ Zustandes (Powerbroadening). Dies führt zu einer teilweisen Überlappung der Hyperfeinzustände $F=0,1,2$ im angeregten Zustand und damit wird durch spontane Zerfälle der $F=1$ Grundzustand bevölkert, der mit der $3^2S_{1/2}, F=2 \rightarrow 3^2P_{3/2}, F=3$ Übergangsfrequenz nicht mehr optisch zu pumpen ist. Dadurch verringert sich die Zahl der Atome im angeregten Zustand und es ergibt sich eine Abnahme des Streusignals.

Das Alignment nimmt für zu hohe Leistungsdichten ebenfalls drastisch ab, da kein stationärer Zustand erreicht werden kann/FiH82/.

Für zirkular polarisiertes Licht mit einer Elliptizität $< 1\%$ kann man höhere Leistungsdichten verwenden (ca. $600 - 1000 \text{ mW/cm}^2$) ohne daß eine Abnahme der Anzahl der angeregten Atome und des optischen Alignments bzw. der Orientierung eintritt / FiH82 /.

2.5 Der Fluoreszenzdetektor

Der Detektor gibt folgende für das Experiment wichtige Informationen:

i) Die Fluoreszenz ist proportional der Dichte der angeregten Natriumatome im Streuzentrum. Bei fester Polarisierung des anregenden Laserlichts lassen sich Dichteschwankungen des Natriumstrahls bestimmen.

ii) Man kann bei linear polarisiertem Licht das durch das optische Pumpen erreichte Alignment ohne Polarisationsanalyse des Fluoreszenzlichts bestimmen.

iii) Man ermittelt aus dem Verlauf der Fluoreszenzintensität die räumliche Stellung des E-Vektors bei linear polarisiertem Licht.

Der an diesem Experiment eingesetzte Fluoreszenzdetektor wurde aus kommerziellen Kamerabauteilen zur Macrophotographie der Fa. Olympus zusammengestellt.

Das System besteht aus einer Spiegelreflexkamera OM 10, in deren Rückwand eine Photodiode eingebaut ist, einem 35 mm und einem 135 mm Macroobjektiv und einer in x-y Richtung verschiebbaren Irisblende. Das Ganze ist auf einer in der Macrophotographie üblichen optischen Schiene aufgebaut.

Das 135 mm Objektiv entwirft in der Ebene der Irisblende ein reelles Zwischenbild des Streuzentrums. Mit der Irisblende wird das Streulicht des Lasers von den Wänden der Streuapparaturs ausgeblendet, sodaß nur die Fluoreszenz im Streuzentrum beobachtet wird. Die 35 mm Linse entwirft eine vergrößerte Abbildung des Zwischenbildes auf einer Photodiode, die in der Filmebene sitzt und nachträglich an der Rückwand der Kamera angebracht wurde. Die hier benutzte Diode ist eine großflächige SD 44-12-12-171.

Eine Spiegelreflexkamera hat auch den großen Vorteil, daß der Spiegel vorgeklappt und die Anregung im Streuzentrum per Auge beobachtet werden kann.

Das Fluoreszenzsignal wird anschließend in einen Keithley Stromverstärker gegeben, dort gemessen und in ein Spannungssignal zwischen 0 und 5 V gewandelt. Der Verstärkungsfaktor beträgt 10^7 bis 10^8 .

2.6 Datenerfassung und Steuerung des Experiments

In diesem Kapitel wird die Nachweiselektronik, Fluoreszenzelektronik, die Prozeßsteuerung und die Datenerfassung erläutert. Zur Steuerung und Datenerfassung wird ein Prozeßrechner Mincal 621/X2 der Fa. Dietz Mühlheim/Ruhr mit 128 Kbyte Speicher und einer Fest- und Wechselplatte von jeweils 2.4 Mbyte Speicherkapazität benutzt. Die Hardwarestruktur des Rechners erlaubt eine schnelle Bearbeitung von Echtzeitproblemen.

Als Schnittstelle zwischen Rechner und Experiment dient ein universelles Camac-Interfacesystem. Zum komfortablen Ansprechen dieser Camac-Schnittstelle wurde in dieser Arbeitsgruppe eine Steuersprache "CAMBAS" entwickelt, die eingebunden in die Programmiersprache "BASEX" die Grundlage der verwendeten Meßprogramme bildet./St77/

Die dabei verwendete Elektronik besteht aus kommerziellen Camac-Einschüben, denen standardisierte NIM-Einschübe vorgeschaltet sind.

2.6.1 Nachweiselektronik

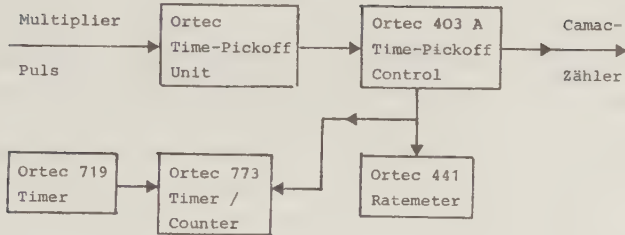


Fig.2.f Schema der Nachweiselektronik

Der Multiplierpuls wird über einen Time-Pickoff und dazugehörigen Time-Pickoff-Control in einen Nim-Puls gewandelt. Die Zählereignisse werden in einem Camaczähler aufaddiert. Auftretende Störpulse kleiner Spannungsamplitude können durch den Diskriminator des Time-Pickoff-Control herausgefiltert werden, sodaß eine Dunkelpulsrate von ca. 1 Puls/sec übrigbleibt, die vom Multiplier herrührt. Zur Beobachtung der Zählraten direkt am Experiment dienen ein Ratemeter und ein Timer/Counter System.

2.6.2 Fluoreszenz

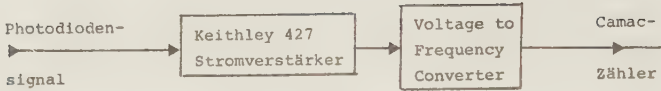


Fig.2.g Fluoreszenzelektronik

Die Fluoreszenzintensität wird mit einer Photodiode gemessen. Der Photostrom wird mit einem Stromverstärker gemessen und in eine Analogspannung gewandelt. Diese wird durch Wahl des Verstärkungsfaktors (ca. 10^7) in den Bereich 0 bis 5 Volt gelegt.

Auf Grund von Brumm- und Störproblemen war eine fehlerfreie Übertragung dieser Spannung in einen Camac-ADC des 30 m entfernt stehenden Rechners nicht möglich. Es wurde ein Voltage-To-Frequency Converter (VFC) entwickelt. Die Fluoreszenzspannung wird mit dem VFC (Raytheon 4151, 10 KHz/Volt) in eine Folge von Rechtecksignalen umgewandelt. Die Frequenz der Rechteckspannung ist der angelegten Analogspannung proportional. Die Übertragung des Signals in einen Camac-Zähler erwies sich als störfrei.

2.6.3 Lichtlogik

Die externe Steuerung des Experiments erfolgt über eine "Lichtlogik". Sie muß direkt auf bestimmte Begebenheiten reagieren. Fällt z.B. die Fluoreszenz unter einen vorgegebenen Wert, so muß das Experiment automatisch angehalten werden, da durch die zu geringe Besetzung des angeregten Zustandes die Meßdaten verschlechtert werden. Dazu dient die Lichtlogik. Sie erzeugt ein externes Veto am Eingang des Camac-Timers und des Camac-Zählers, und hält damit die Messung an, wenn z.B. folgende Situation besteht:

Chopper ist offen und es ist keine Fluoreszenz vorhanden.

Es gibt nun drei Eingangsvariablen und eine Ausgangsvariable die folgendermaßen definiert sind:

Fluo: 0 = Zu geringe Fluoreszenz (bzw. keine)
 1 = Fluoreszenz vorhanden

Chopper: 0 = Chopper geschlossen
 1 = Chopper offen

Handstop: 0 = Experiment anhalten
 1 = betriebsbereit

Veto: 0 = kein Veto
 1 = Veto

Die aus den Versuchsbedingungen resultierende Verknüpfungstabelle lautet:

Fluo	Chop	Handstop	Veto
0	0	0	1
1	0	0	1
0	1	0	1
1	1	0	1
0	0	1	0
1	0	1	1
0	1	1	1
1	1	1	0

Diese Logikschaltung ist über übliche Nand-Gatter realisiert und zusammen mit dem VFC in einem Nim-Einschub untergebracht.

2.6.4 Prozeßsteuerung

Die Schnittstelle zwischen Experiment und dem hier verwendeten Prozeßrechner 621/X2 ist das Camac-System. Das Zusammenwirken der einzelnen Elemente ist im folgenden Blockschema dargestellt:

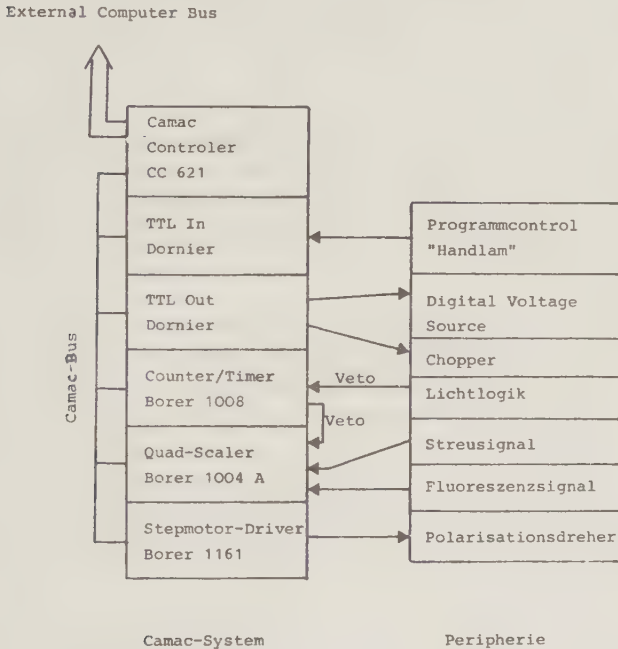


Fig.2.h Prozeßsteuerung

Gesteuert wird das System durch ein in "BASEX-CAMBAS" geschriebenes umfangreiches Meßprogramm, das eine automatische Speicherung der neuesten Meßwerte, Umschalten auf den nächsten Meßkanal, Display der Meßwerte, Anhalten der Messung bei Störungen etc. vornimmt.

2.7 Die Messverfahren

Untersucht man den Quenchprozeß $\text{Na}(3P \rightarrow 3S)$ in Na^+ -Stößen, so kann man drei verschiedene Arten von Messungen durchführen:

i) Nachweis des Übergangs $3P \rightarrow 3S$ indem man Energieverlustspektren der gestreuten Na^+ -Ionen aufnimmt (d.h. Variation der Nachweisenergie bei fest vorgegebener Primärenergie des Ionenstrahls und festem Streuwinkel)

ii) Messung der Winkelabhängigkeit des superelastischen Prozesses (feste Primärenergie, feste Nachweisenergie, Variation des Streuwinkels); man erhält so den differentiellen Wirkungsquerschnitt. Die Abhängigkeit der Nachweisenergie vom Streuwinkel ist für die kleinen Streuwinkel vernachlässigbar.

iii) Polarisationsstudien. Dabei bestimmt man In-Plane und Out-Of-Plane die Streuintensität als Funktion der linearen Polarisation (Variation der Richtung des E-Vektors bei fester Ionenenergie, fester Nachweisenergie, und festem Streuwinkel). Weiterhin mißt man Out-Of-Plane das Asymmetrieverhältnis zwischen links- und rechtszirkular polarisiertem Licht. Aus diese Messungen kann man die komplette Dichtematrix des zeitumgekehrten, stoßinduzierten Zustandes bestimmen.

Die Streuebene ist durch die Richtung des einlaufenden und auslaufenden Teilchens bestimmt. In-plane bedeutet Einschuß des Laserstrahls in der Streuebene, Out-of-plane heißt Einschuß des Lasers senkrecht zur Streuebene.

Die Streuintensitäten des superelastischen Übergangs sind recht gering (ca. 10-15 counts/sec), sodaß eine äußerst sorgfältige Justierung der einzelnen Komponenten notwendig ist. Zur Durchführung einer kompletten Meßserie (i - iii) für eine Energie benötigt man mit den experimentellen Vorbereitungen ca. 20h Meßzeit.

3. GRUNDLAGEN DER STREUTHEORIE

3.1 Einleitung

Im Energiebereich zwischen $E_{\text{Lab}} = 30$ bis 100 eV lassen sich Stöße atomarer Teilchen im quasimolekularen Bild beschreiben. Theoretisch wird ein solcher Stoßprozess durch die zeitunabhängige Schrödingergleichung behandelt. Benutzt man eine adiabatische elektronische Wellenfunktion und führt die Born-Oppenheimer-Näherung durch, so erhält man die adiabatischen Potentiale des Moleküls. In dieser Näherung sind Übergänge zwischen den verschiedenen Potentialkurven nicht möglich

In bestimmten Bereichen sind die Koppelemente, die über die Kernbewegung elektronische Zustände miteinander koppeln, nicht mehr vernachlässigbar und man erhält zwei Arten von Kopplungen, die Radial- und die Winkelkopplung. Dies sind zB. Bereiche, in denen sich Potentialkurven kreuzen oder im adiabatischen Bild vermiedene Kreuzungen der Potentiale vorkommen. Dort kann es zu inelastischen oder superelastischen elektronischen Übergängen kommen.

Berücksichtigt man die Kopplung der adiabatischen elektronischen Zustände über die Kernbewegung, so erhält man ein gekoppeltes Differentialgleichungssystem, das Elektronen- und Kernbewegung vollständig quantenmechanisch beschreibt.

Eine analytische Lösung des Differentialgleichungssystems ist in den allermeisten Fällen nicht möglich, sodaß man nach geschickten physikalischen Näherungen sucht um die Rechnung zu vereinfachen.

Bei kleinen Stoßenergien benutzt man die semiklassische Näherung, bei der die Bewegung der schweren Kerne klassisch, die der Elektronen quantenmechanisch behandelt wird. Zur weiteren Vereinfachung bei der Berechnung von Streuamplituden und differentiellen Querschnitten führt man noch die "gerade Trajektorie" /Bat62/ und die Magnusapproximation /Mag54/ ein. In diesem Kapitel sollen diese Verfahren kurz erläutert und theoretische Ergebnisse vorgestellt werden. Eine ausführliche Beschreibung der Theorie und der verwendeten Verfahren findet man bei Child: "Molecular Collision Theory", Eu: "Semiclassical Theory of Molecular Scattering", und in dem Reviewartikel von Marias und Riera (/Child/, /Eu/, /MR82/)

3.2 Quantenmechanische Formulierung des Streuproblems und die Born-Oppenheimer-Näherung

Die Wechselwirkung eines zweiatomigen molekularen Systems wird durch die zeitunabhängige Schrödingergleichung beschrieben.

$$3.1 \quad (H - E) \Psi = 0$$

Dabei ist H der Gesamthamiltonoperator, E die Gesamtenergie und Ψ die Wellenfunktion des Systems.

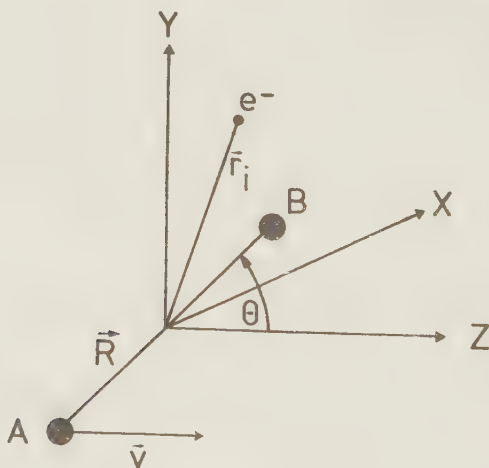


Bild 3.a Koordinatensystem raumfest

Im folgenden betrachten wir ein System zweier Kerne der Masse M_A und M_B mit den dazugehörigen n Elektronen der Masse m . Relativ zu einem festen Koordinatenursprung seien ihre Vektorkoordinaten $\vec{r}_i$, $\vec{R}_A$ und $\vec{R}_B$. Da die Bewegung des Schwerpunktes des Gesamtsystems keine Information über die Dynamik des Stoßvorgangs enthält, wird sie absepariert. Dazu definiert man als Relativkoordinate den Abstandsvektor der Kerne

$$3.2 \quad \vec{R} = \vec{R}_A - \vec{R}_B$$

und bezieht die Elektronenkoordinaten auf den Schwerpunkt des Kerngerüsts

Der Hamiltonoperator schreibt sich nun als:

$$3.3 \quad H = - \sum_i (\hbar^2/2\mu) \nabla_{\vec{r}_i}^2 + V - (\hbar^2/2\mu) \nabla_{\vec{R}}^2$$

Zur Vereinfachung definiert man den elektronischen Hamiltonoperator:

$$3.4 \quad H^{el} = - \sum_i (\hbar^2/2\mu) \nabla_{\vec{r}_i}^2 + V$$

Das vollständige Potential V für im Abstand R festgehaltene Kerne ist:

$$3.5 \quad V = \sum_{i=1}^n \left(-\frac{Z_A e^2}{r_A} - \frac{Z_B e^2}{r_B} + \sum_{j=j+1} \frac{e^2}{r_{ij}} \right) + \frac{Z_A Z_B e^2}{R}$$

Dabei sind r_A , r_B und r_{ij} der Abstand des i -ten Elektrons vom Kern A, B, bzw. vom Elektron j .

Die Gesamtwellenfunktion des Systems wird nun nach den elektronischen Eigenfunktionen entwickelt,

$$3.6 \quad \Psi(\vec{r}, \vec{R}) = \sum_i \Psi_i(\vec{r}, \vec{R}) a_i(\vec{R})$$

wobei die $\Psi_i(\vec{r}, \vec{R})$ orthonormal, aber sonst beliebig sind. Sie sind zunächst keine Eigenfunktionen von H_{e1} .

Für große $\vec{R}$ sollen die elektronischen Eigenfunktionen $\Psi_i(\vec{r}, \vec{R})$ in die atomaren elektronischen Eigenfunktionen $\Psi_i^0(\vec{r})$ übergehen.

$$3.7 \quad \Psi_i(\vec{r}, \vec{R}) \longrightarrow \Psi_i^0(\vec{r})$$

Einsetzen der Entwicklung 3.6 in Gleichung 3.1 liefert nach Multiplikation mit $\Psi_k(\vec{r}, \vec{R})$, Ausnützen der Orthogonalitätsrelation und Integration über die Elektronenkoordinaten die gekoppelten Differentialgleichungen:

$$3.8 \quad \begin{aligned} &(-(\hbar^2/2\mu) \nabla_{\vec{R}}^2 + V_{ii}(R) - E) a_i(\vec{R}) = \\ &\quad - (V_{ij} + T'_{ij} + T''_{ij}) a_j(\vec{R}) \end{aligned}$$

Dabei werden folgende Abkürzungen benutzt:

$$3.9 \quad V_{ij} = \langle \Psi_i | H_{e1} | \Psi_j \rangle$$

$$3.10 \quad T'_{ij} = -2(\hbar^2/2\mu) \langle \Psi_i | \nabla_{\vec{R}} | \Psi_j \rangle \nabla_{\vec{R}}$$

$$3.11 \quad T''_{ij} = -(\hbar^2/2\mu) \langle \Psi_i | \nabla_{\vec{R}}^2 | \Psi_j \rangle$$

Mit dem Gleichungssystem 3.8 wird der Streuprozess quantenmechanisch exakt beschrieben. Allerdings ist eine analytische Lösung in den allermeisten Fällen nicht möglich und man greift zu Näherungsverfahren die in Kap. 3.3 skizziert sind.

Die Vernachlässigung der Koppelterme T_{ij}' und T_{ij}'' bezeichnet man als die adiabatische oder Born-Oppenheimer-Näherung. Eine Abschätzung der Koppelterme findet man in /O'M71/. Verschiedene elektronische Zustände werden nur noch über die Potentialmatrixelemente V_{ij} gekoppelt. Diese Kopplung verschwindet ebenfalls, wenn als Basisfunktionen die Eigenfunktionen Ψ_i des elektronischen Hamiltonoperators gewählt werden.

Da die Kernbewegung bei kleinen Stoßenergien langsam ist im Vergleich zur Elektronenbewegung, existiert für jeden internuklearen Abstand R ein vollständiges Orthonormalsystem von elektronischen Eigenfunktionen $\Psi_i^{ad}(\vec{r}, \vec{R})$ des elektronischen Hamiltonoperators H_{el} . Sie sind auch als Born-Oppenheimer Basisfunktionen bekannt.

$$3.12 \quad H_{el} \Psi_i^{ad}(\vec{r}, \vec{R}) = \epsilon_i \Psi_i^{ad}(\vec{r}, \vec{R})$$

Die Wahl dieser Basis ist nur eine Möglichkeit. Unter Umständen kann es vorteilhafter sein eine diabatische Basis zu wählen /Smith 68/, /TD78/.

Die Schrödinger-Gleichung in Born-Oppenheimer-Näherung lautet.

$$3.13 \quad (-\hbar^2/2\mu) \nabla_{\vec{R}}^2 + V_{ii}(\vec{R}) - E_i) a_i(\vec{R}) = 0$$

Diese Gleichung beschreibt z.B. Schwingungen eines gebundenen Moleküls, oder die elastische Streuung am Potential $V_{ii}(\vec{R})$. Übergänge zwischen den adiabatischen Potentialkurven sind in Gleichung 3.13 nicht mehr enthalten.

3.3. Die Na_2^+ - Potentiale

In diesem Kapitel werden die adiabatischen Potentiale des Na_2^+ -Moleküls vorgestellt. Dieses Stoßmolekül wird aus einem Na-Atom und einem Na^+ -Ion gebildet, deren gesättigte Rumpfelektronen (Cores) bei den individuellen Kernen bleiben, während das gemeinsame Valenzelektron, das sich in einem durch die Core-Elektronen abgeschirmten Potential bewegt, die Bindung vermittelt. Somit ist das Na_2^+ -Molekül in seiner Struktur dem H_2^+ -System ähnlich und deshalb von besonderem theoretischen und experimentellen Interesse. Das Valenzelektron bestimmt ausschließlich das chemische Verhalten des Na_2^+ und die Dynamik der Streuung. Da die Restelektronen des Rumpfes fest an die einzelnen Kerne gebunden bleiben, bietet sich zur Bestimmung des Potentials in dem sich das Valenzelektron bewegt, die Pseudopotential- oder Modellpotentialmethode an. Dabei werden zur Potentialberechnung nicht sämtliche Wechselwirkungen aller Elektronen untereinander und mit den Kernen wie im Ansatz 3.5 berücksichtigt, sondern das Core der Rumpfelektronen wird als Ganzes betrachtet (frozen core Näherung) und seine Wechselwirkungen und die der Kerne mit dem Valenzelektron berücksichtigt.

Einen Überblick über die Pseudopotentialmethode und ihre Anwendung findet man in einem Übersichtsartikel von Weeks, Hazi und Rice. /WHR70/

Mit verschiedenen Methoden wurden in den letzten Jahren Alkali-Alkaliionen-Potentiale von einer Reihe von Autoren berechnet:

Bardsley:	Na_2^+	/Bard70/
Cerjan:	Na_2^+	/Cer76/
Habitz :	$\text{Na}_2^+, \text{Li}_2^+, \text{NaLi}^+$	/Hab75/
Konowalow:	Li_2^+	/KR79/
Masnou-Seuves:	Na_2^+	/MS83/
McMillan:	Li_2^+	/McM71/
Nemukhin:	$\text{Li}_2^+, \text{Na}_2^+, \text{K}_2^+,$ $\text{Rb}_2^+, \text{Cs}_2^+$	/NS79/
Montagnani:	Na_2^+	/MRS83/
Valence:	Na_2^+	/Val78/

Für eine qualitative Erklärung der hier vorgestellten Meßergebnisse waren die vorhandenen Na_2^+ Potentiale ausreichend. Für eine quantitative Diskussion des gemessenen differentiellen superelastischen Wirkungsquerschnittes und der Polarisationsseffekte genügten sie nicht mehr, da streudynamische Rechnungen, die diese Potentiale benutzen, nicht mit dem Experiment übereinstimmen.

Daher wurde in Kaiserslautern von W.Meyer und N.Spies eine neue Berechnung der Potentiale durchgeführt. Die Potentiale wurden dann in den von uns durchgeführten Streurechnungen benutzt.

Das von Meyer et.al. benutzte Pseudopotential hat die folgende Form:

3.14

$$\begin{aligned}
 V = \sum_k \left(-\frac{1}{r_k} - \frac{A}{r_k} e^{-a r_k^2} + \sum_l^{\text{occ}} B_l e^{-b_l r_k^2} p_k(l) - \frac{\alpha}{2r_k^4} e^{-(r_k/r_c)^4} \right. \\
 \left. + \frac{\alpha \vec{r}_k \cdot \vec{R}}{r_k^3 R^3} e^{-(r_k/r_c)^2} \right) + \frac{1}{R} - \frac{\alpha}{2R^4}
 \end{aligned}$$

Dabei ist r_k der Abstand des Valenzelektrons zum Kern k , r_c der Cut-off Radius für die Rumpfpolarisation, und R der Kernabstand.

Die Terme in Gl.3.14 haben folgende Bedeutung:

Term 1 und 2 beschreiben das abgeschirmte Coulombpotential der Atomrümpfe.

Term 3 ist der abstoßende Effekt den der vollbesetzte Rumpf mit dem Drehimpuls l auf das Valenzelektron ausübt. Dabei ist $p_k(l)$ der Projektionsoperator des Drehimpulses.

Die Polarisierbarkeiten der Atomrümpfe sind durch Term 4 und 5 dargestellt.

Die beiden letzten Terme beinhalten das Coulombpotential der Kerne und ihre Polarisierbarkeiten.

Die in dem Ansatz auftretenden Parameter sind in Tabelle 3.1 aufgelistet.

Tab 3.1: Parameter des Pseudopotentials (Einheiten in a.u.)

A	1.1000	a	0.6300	r_c	0.9605
B_0	0.7476	b_0	1.1492		
B_1	3.3891	b_1	0.6994		

Die Rumpfpolarisierbarkeiten und der Abschneideradius r_c wurden durch ab-initio Rechnungen bestimmt./Mü84/. Die restlichen Parameter erhält man durch Fits der vier niedrigsten Atomzustände mit s, p und d-Symmetrien an die experimentell bekannten asymptotischen Energien. /Sp82/. Als Basiswellenfunktionen zur Berechnung der Potentiale benutzte man Gauß-funktionen.

In Fig.3.b und 3.c sind die Potentiale dargestellt, die für die hier diskutierten Prozesse wichtig sind.

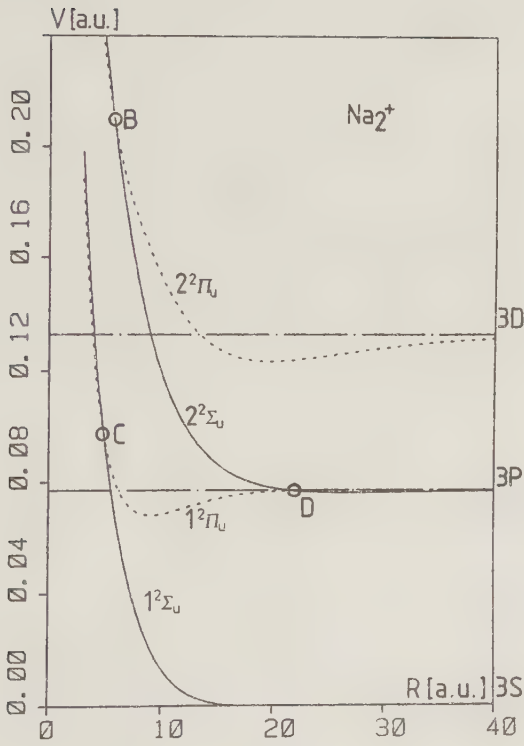


Fig.3.b Potential Na_2^+

Fig. 3.b zeigt die adiabatischen Potentiale des Na_2^+ -Moleküls bis zum asymptotischen Zustand $\text{Na}(3d) + \text{Na}^+$. Aufgetragen ist die potentielle Energie in atomaren Einheiten gegenüber dem Kernabstand R . Die Klassifikation der Elektronenterme des Moleküls folgt der üblichen Bezeichnungsweise

$$2S+1 \Lambda_{g,u}$$

Λ ist der Betrag der Projektion des Bahndrehimpulses auf die Kernverbindungsachse, S bezeichnet den elektronischen Gesamtspin und g bzw. u geben die Symmetrie des Molekülzustandes bezüglich des Ursprungs der Elektronenkoordinaten an. Dieser Ursprung wird üblicherweise bei zweiatomigen Molekülen in den Schwerpunkt gelegt. Wellenfunktionen, die bei der Transformation der Elektronenkoordinaten von $(+r)$ nach $(-r)$ ihr Vorzeichen nicht ändern heißen "gerade" (g), andere "ungerade" (u).

Es sind hier nur die ungeraden Zustände aufgetragen, da die geraden Molekülzustände für den superelastischen Streuprozess keine Rolle spielen.

Der elektronische Grundzustand wird aus dem $1\Sigma_u$ und $1\Sigma_g$ Potential gebildet. Für große Kernabstände R dissoziiert er in die stabile Atomkonfiguration $\text{Na}^+ + \text{Na}(3s)$, was in Fig.3.b durch die Bezeichnung $3S$ angedeutet ist. Die $1^2\Sigma_u$ Potentialkurve kreuzt bei dem internuklearen Abstand $R_C = 4.855$ a.u. die $1^2\Pi_u$ Kurve des angeregten Na_2^+ -Moleküls. Dieses Potential bildet zusammen mit dem $2^2\Sigma_u$ Zustand und den nicht eingezeichneten entsprechenden geraden Zuständen im Unendlichen die atomare $\text{Na}^+ + \text{Na}(3p)$ Konfiguration. Im Punkt B schneidet sich die $2^2\Sigma_u$ Kurve mit der $2^2\Pi_u$ Kurve. Diese dissoziiert in den atomaren $\text{Na}^+ + \text{Na}(3d)$ Zustand.

Es wurden Potentialkurven höherer Energie bis zu dem asymptotischen $5s$ -Zustand berechnet /EHMSMS84/.

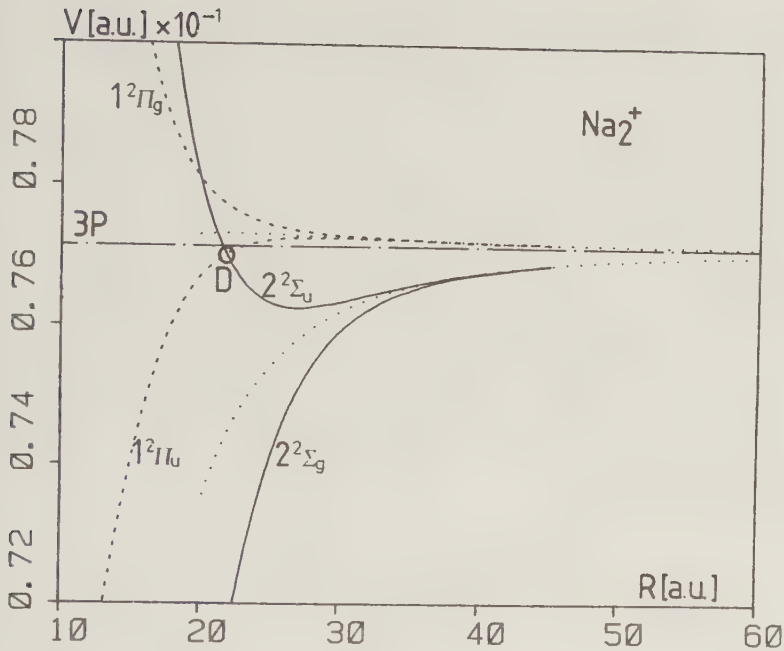


Fig.3.c Langreichweitige Na_2^+ -Potentiale

In Fig.3.c ist der langreichweitige Teil des angeregten Na_2^+ -Potentials vergrößert dargestellt. Man erkennt bei einem Kernabstand von $R_C = 21.89$ a.u. eine Kreuzung des $2^2\Sigma_u$ Zustandes mit der $1^2\Pi_u$ -Kurve.

Diese Daten sind in Tabelle 3.2 zusammengefaßt.

Tab.3.2 Σ_u/Π_u Kreuzungspunkte

	B	C	D
$R_C(\text{a.u.})$	5.682	4.855	21.89

In dieser Arbeit interessiert die $1^2\Pi_u - 1^2\Sigma_u$ Kreuzung, da hier ein nichtadiabatischer Übergang zwischen den Potentialkurven möglich ist. Der langreichweitige Potentialteil (Fig.3.c) ist für das gemessene Polarisationsverhalten verantwortlich.

Zur numerischen Behandlung von Streuproblemen benötigt man einen analytischen Fit der Potentiale, die punktweise diskret gegeben sind. Diese Fits wurden mit dem Programm 'M1NUIT' der Programmbibliothek von Cern durchgeführt /Cernsoftware/. Der repulsive Grundzustand wurde mit zwei Exponentialfunktionen dargestellt, während für die elektronisch angeregten Zustände, die ein Potentialminimum haben, Morsefunktionen den besten Fit ergaben. Die Abweichungen der im Folgenden aufgelisteten Fits von den Originalpotentialen sind durchweg kleiner als zwei Prozent.

Grundzustand: $1^2\Sigma_u$

$$V(R) = A \exp(-a R) + B \exp(-b R)$$

$$A = 2111.348$$

$$a = 4.53374$$

$$B = 0.597702$$

$$b = 0.372536$$

Angeregte Zustände: $1^2\Sigma_u, 2^2\Pi_u$

innen:

$$V(R) = E (1 - \exp(-a (R-R_0)))^2 + T$$

außen (asymptotisch):

$$V(R) = C/R^3 + D/R^4 + T$$

$1^2\Pi_u:$ $R < 37 \text{ a.u.}$ $R > 37 \text{ a.u.}$ $E = 0.00912$ $C = 8.05$ $R_0 = 9.012$ $D = -134.0$ $a = 0.2536055$ $T = 0.077$ $T = 0.06814$ $2^2\Sigma_u$ $R < 45 \text{ a.u.}$ $R > 45 \text{ a.u.}$ $E = 0.000875$ $C = -16.11$ $R_0 = 27.08$ $D = -268.0$ $a = 0.1214885$ $T = 0.077$ $T = 0.0763397$

3.4. Die Semiklassische Näherung

In Kapitel 3.1 wurde die quantenmechanische Behandlung des Streuproblems skizziert. Eine exakte Lösung der Schrödinger-gleichung bzw. der daraus resultierenden gekoppelten Differentialgleichungen ist nicht möglich. Man muß daher zu physikalisch sinnvollen Näherungen übergehen.

In der semiklassischen Näherung nutzt man folgende Eigenschaften des Stoßsystems aus:

- 1) Die Massen der Kerne sind sehr viel größer als die der Elektronen.
- 2) Bei den betrachteten niedrigen Stoßenergien ist die Relativgeschwindigkeit der Kerne sehr viel kleiner als die Umlaufgeschwindigkeit der Elektronen.

Die Kernbewegung ist in der semiklassischen Näherung von der Elektronenbewegung abgekoppelt. Zur Beschreibung der Kernbewegung benutzt man eine klassische Bahn, eine sogenannte Trajektorie, während die Elektronenbewegung weiterhin quantenmechanisch behandelt wird. Für das Quasimolekülsystem Na_2^+ kann diese Näherung bei Stoßenergien zwischen 15 eV und 50 eV angewendet werden. Eine ausführliche Behandlung dieser Theorie findet man bei /Child/, /Eu/ oder /MR82/.

Die Bewegung des stoßenden Teilchens wird durch eine klassische Bahn $\vec{R} = \vec{R}(t)$ beschrieben. Diese Bahn wird durch ein zeitabhängiges Wechselwirkungspotential $V(\vec{R}(t), \vec{r}_1)$ bestimmt. Das raumfeste Koordinatensystem ist wie in Fig.3.a definiert, wobei die Schwerpunktsbewegung bereits absepariert ist. Der Nullpunkt des Koordinatensystems wird in den Schwerpunkt gelegt, die z^{col} -Achse zeigt in Richtung der Anfangsgeschwindigkeit, die x-z-Ebene wird durch die Streuebene gebildet und es wird ein rechtshändiges Koordinatensystem benutzt.



Fig.3.d Trajektorie (/Child/)

Der Hamiltonoperator des Gesamtsystems hat folgende Form:

$$3.15 \quad H = T^n + T^e + V(\vec{R}(t), \vec{r}_i)$$

Dabei bedeuten die einzelnen Terme:

T^n : Kinetische Energieoperator der Kerne

T^e : dto. für die Elektronen

$V(\vec{R}, \vec{r}_i)$: Potential

Die Elektronen bewegen sich in einem zeitlich veränderlichen Potential $V = V(\vec{R}(t), \vec{r}_i)$, das durch die Trajektorie bestimmt wird. Die Elektronenbewegung wird durch die zeitabhängige Schrödingergleichung 3.16 beschrieben. Eine mathematisch exakte Herleitung der Gl.3.16 aus der allgemeinen Schrödingergleichung des Gesamtsystems findet man in dem Reviewartikel von Macias und Riera /MR82/. Dort wird ein Überblick der verwendeten semiklassischen Streutheorie gegeben.

Die zeitabhängige Schrödingergleichung für die Elektronenbewegung lautet:

$$3.16 \quad i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\vec{R}(t), \vec{r}_i) = H^{el} \Psi(\vec{R}(t), \vec{r}_i)$$

Dabei ist

$$3.17 \quad H^{el} = H^{int} + V(\vec{R}(t), \vec{r}_i)$$

Die Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung wird in der adiabatischen Näherung entwickelt:

3.18

$$\Psi(\vec{R}(t), \vec{r}_i) = \sum_n a_n(t) \psi_n^{ad}(\vec{R}(t), \vec{r}_i) \exp(-i/\hbar \int_{-\infty}^t V_{nn}(\vec{R}(t)) dt)$$

Da elektronische adiabatische Potentiale benutzt werden, beschränken wir uns hier auf adiabatische Wellenfunktionen, die die Elektronenspin-eigenfunktionen nicht enthalten. Deshalb wird im folgenden der Zusatz "ad" zur Vereinfachung der Schreibweise weggelassen.

Die $a_n(t)$ sind die über $\vec{R}(t)$ zeitabhängigen Bevölkerungsamplituden der elektronischen Zustände und die elektronischen Eigenfunktionen $\psi_n(\vec{R}(t), \vec{r}_i)$ bilden eine vollständige orthonormale Basis für jedes $\vec{R}(t)$. Der Integrand in der Exponentialfunktion bedeutet:

$$3.19 \quad V_{nn} = \langle \psi_n | H^{el} | \psi_n \rangle$$

Der Stoßbeginn wird durch den Zeitpunkt $t = -\infty$, der klassische Umkehrpunkt durch $t = 0$ und das Ende des Stoßes durch $t = \infty$ festgelegt.

Einsetzen von Gl.3.18 in die Schrödingergleichung 3.16, Multiplikation von links mit

$$\psi_k(\vec{R}(t), \vec{r}_j) \exp(i/\hbar \int_{-\infty}^t V_{kk} dt'),$$

Integration über alle Elektronenkoordinaten und ausnutzen der Orthogonalitätsbedingung liefert nach einigem Rechnen ein System von gekoppelten Differentialgleichungen für die Besetzungsamplituden $a_n(t)$:

3.20

$$i\hbar \frac{d}{dt} a_n(t) = \sum_{k \neq n} a_k(t) \langle \psi_n | H^{el} - i\hbar \frac{\partial}{\partial t} | \psi_k \rangle \exp(-i/\hbar \int_{-\infty}^t (V_{kk} - V_{nn}) dt')$$

Die Lösung dieses Differentialgleichungssystems ergibt die komplexen Besetzungsamplituden der elektronischen Zustände zu jedem Zeitpunkt t . Für die Anfangsbedingungen muß die Normierung

3.21 $|a_i|^2 = 1$ erfüllt sein.

Die Kopplungsmatrixelemente $\langle \psi_n | H^{el} - i\hbar \frac{\partial}{\partial t} | \psi_k \rangle$ können nun Übergänge zwischen verschiedenen elektronischen Zuständen bewirken.

Zur Integration der gekoppelten Gleichungen 3.20 benötigt man die Trajektorie $\vec{R}(t)$. In sphärischen Koordinaten erfüllt die Trajektorie die klassischen Bewegungsgleichungen /Gold/:

3.22

$$\frac{dR}{dt} = +v \left(1 - \frac{b^2}{R^2} - \frac{V(R)}{E} \right)^{1/2}$$

$$d\theta/dt = vb/R^2$$

$$\Phi = \text{const.}$$

Für kleine Streuwinkel kann man die gekrümmte Trajektorie durch eine gerade Bahn ersetzen (straight line approximation $v=v_z$) /Mott31/, /Bat62/ und es ergeben sich folgende einfachen Bewegungsgleichungen:

$$3.23 \quad R = (b^2 + v_z^2 t^2)^{1/2}$$

$$\theta = \text{arctg}(b/v_z t)$$

$$\Phi = \text{const}$$

Gleichung 3.20 beschreibt den Streuprozess in einem raumfesten Koordinatensystem. Die Quantisierungsachse ist dabei die Primärstrahlachse. Während des Streuprozesses bildet sich ein Quasimolekül, dessen ausgezeichnete Achse und damit Quantisierungsachse die Kernverbindungsline ist. Es bietet sich an, Gleichung 3.20 in das rotierende molekulare Koordinatensystem zu transformieren.

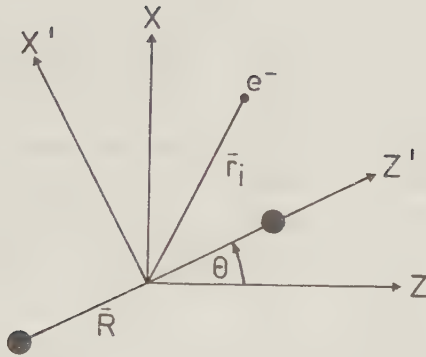


Fig.3.e Transformation raumfest-rotierend

Wir beschränken uns auf Systeme mit einem Elektron und bezeichnen mit $\Psi_k(\vec{R}(t), \vec{r}')$ die elektronischen Wellenfunktionen bezüglich der Kernverbindungsachse, mit $\vec{r}' = (x', y', z')$ den Ortsvektor des Elektrons in molekularen System. Dann gelten die Transformationsformeln und Zusammenhänge:

3.24

$$\vec{r}' = \begin{pmatrix} \cos \theta & 0 & -\sin \theta \\ 0 & 1 & 0 \\ \sin \theta & 0 & \cos \theta \end{pmatrix} \vec{r}$$

$$\frac{\partial}{\partial t} = \frac{d\vec{R}(t)}{dt} \frac{\partial}{\partial \vec{R}} + \frac{d\vec{r}'}{dt} \frac{\partial}{\partial \vec{r}'}$$

$$\frac{d\vec{R}(t)}{dt} = \vec{v}_R$$

Man erhält somit für den Operator $\partial/\partial t$:

3.25

$$\frac{\partial}{\partial t} = \vec{v}_R \frac{\partial}{\partial R} - \dot{\theta} \left(z' \frac{\partial}{\partial x'} - x' \frac{\partial}{\partial z'} \right)$$

Die Elektronenkoordinate $\vec{r}$ ist im ungestrichenen, dh. raumfesten System fest, die Koordinaten x, y, z hängen nicht von der Zeit ab.

Da

$$3.26 \quad \frac{i}{\hbar} L_Y = z' \frac{\partial}{\partial x'} + x' \frac{\partial}{\partial z'}$$

ergibt sich für den Zeitoperator $\partial/\partial t$

$$3.27 \quad \frac{\partial}{\partial t} = \vec{v}_R \frac{\partial}{\partial R} - \dot{\theta} \frac{i}{\hbar} L_Y$$

Durchführen der Transformation ergibt die gekoppelten Differentialgleichungen im rotierenden Koordinatensystem. (Da im folgenden nur das rotierende System verwendet wird, entfallen die Striche an den Koordinaten)

3.28

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} a_n(t) = & \sum_{k=n} a_k(t) \left\{ \vec{v}_R \langle \psi_n | \frac{\partial}{\partial R} | \psi_k \rangle \right. \\ & \left. - \frac{i}{\hbar} \langle \psi_n | L_Y | \psi_k \rangle \right\} \exp \left(- \frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t (V_{kk} - V_{nn}) dt' \right) \end{aligned}$$

Die verschiedenen elektronischen Zustände werden im molekularen System über zwei Kopplungen miteinander verbunden.

i) Radialkopplung $\vec{v}_R \langle \psi_n | \partial/\partial R | \psi_k \rangle$

Die Radialkopplung koppelt Zustände gleicher Symmetrie und unterliegt der Auswahlregel $\Delta \Lambda = 0$. Sie ist von der Stoßenergie abhängig und man bezeichnet sie deshalb als dynamische Kopplungen.

ii) Rotationskopplung

$$\langle \Psi_n | i/\hbar L_y | \Psi_k \rangle$$

Die Rotationskopplung ist auch stoßenergieabhängig. Sie koppelt Zustände verschiedener Symmetrie und gehorcht der Auswahlregel $\Delta A = \pm 1$.

Die Rotationskopplung ermöglicht den superelastischen Übergang $1\Pi_u - 1\Sigma_u$ im Na_2^+ -Molekül. Wenn man Spinflips unter Einfluß der Rotationskopplung (Feinstrukturübergänge) berechnen will, muß man in Gl.3.28 elektronische Eigenfunktionen zum elektronischen Gesamtdrehimpuls $J = L + S_z$ unter Einschluß des Spins und die entsprechenden Potentiale benutzen.

Zur Lösung der gekoppelten Gleichungen 3.28 benötigt man die Matricelemente der Rotations- bzw. der Radialkopplung.

Dazu muß man überlegen, welche Zustände des Na_2^+ -Potentials bei den Rechnungen berücksichtigt werden müssen. Wir betrachten die beiden angeregten Potentiale ($1\Pi_u$ und $2\Sigma_u$), die asymptotisch zum atomaren 3P führen, und den Grundzustand $1\Sigma_u$, der zum atomaren 3S führt. Die Kreuzungspunkte der Potentiale sind im vorigen Kapitel aufgeführt. Nur diese Zustände tragen zu den beobachteten Streuquerschnitten und Polarisationsabhängigkeiten bei. Damit erhält man ein gekoppeltes Gleichungssystem mit drei Zuständen und es sind drei Matricelemente der Rotationskopplung zu bestimmen. Man wählt Basisfunktionen Ψ_k bei denen die elektrostatische Kopplung verschwindet, die Ψ_k sind also Eigenfunktionen des elektronischen Hamiltonoperators. Die Radialkopplung wird nicht berücksichtigt, da sie nur zwischen $1\Sigma_u$ und $2\Sigma_u$ Zuständen auftritt und der energetische Abstand bei den Stoßparametern und Stoßenergien dieses Experimentes sehr groß ist. Somit koppeln diese Zustände nicht.

Als Koppelemente wurden die in Tab.3.3 gegebenen Werte, die sich aus den Pseudopotentialen ergaben für die Berechnungen benutzt:

/AK84/ und /Apr/

Tab.3.3

$$\begin{aligned}
 A_{12} &= \langle 1\Psi_u | iL_Y | 1\Psi_u \rangle \\
 &= 1.0 && \text{für } R < 50 \text{ a.u.} \\
 &= 0. && \text{sonst} \\
 \\
 A_{23} &= \langle 1\Psi_u | iL_Y | 2\Psi_u \rangle \\
 &= 0. && \text{für } R < 7 \text{ a.u.} \\
 &= 0.07571 \cdot R - 0.5299 && \text{für } 7 \leq R < 14 \text{ a.u.} \\
 &= \exp(-0.81447/(R-12.71)) && \text{für } R \geq 14 \text{ a.u.} \\
 \\
 A_{13} &= \langle 1\Psi_u | iL_Y | 2\Psi_u \rangle = 0.
 \end{aligned}$$

Mit diesen Daten wurde eine numerische Lösung des Gleichungssystems 3.28 durchgeführt. Das benutzte Programm und Lösungsverfahren wird im Anhang beschrieben.

Aus den so gewonnenen Besetzungsamplituden lassen sich, wie in Abschnitt 3.5 gezeigt wird, der Alignmentwinkel γ und die Orientierung P_3 bestimmen. Somit lassen sich auch die Dichtematrixelemente theoretisch bestimmen falls man eine kohärente Stoßanregung voraussetzt.

Erste vollständige semiklassische Rechnungen eines Alkali-Alkaliion-Systems bei kleinen Stoßenergien incl. der Berechnung der Koppelemente und des Pseudopotentials wurden am Li_2^+ -System von Mc-Millan et.al.durchgeführt /McM71/. Basierend auf diesen Verfahren wurde der differentielle Querschnitt des inelastischen $3^2\text{S} - 3^2\text{P}$ Übergangs im Na_2^+ von F.v.Busch et.al.mit den Potentialen von Habitz /Hab75/ berechnet und gemessen /v.Busch84/ /Hormes /.

Die differentiellen Streuquerschnitte lassen sich nach folgenden Formalismus bestimmen /Child/:

Wählt man die Anfangsbedingungen der Besetzungsamplituden zu

$$3.29 \quad a_i(t=-\infty) = \delta_{ij} \quad \text{für alle } j,$$

so ergibt sich die Übergangswahrscheinlichkeit P_{ij} von Kanal i zu Kanal j zu:

$$3.30 \quad P_{ij} = |a_j(t=\infty)|^2$$

und der differentielle Streuquerschnitt zu

$$3.31 \quad \frac{d\sigma_{ij}}{d\Omega} = I_{ij}(\theta, \phi) \\ = \sum I_{el}(\theta) P_{nm}(b, \phi)$$

$I_{el}(\theta)$ ist die elastische Streuintensität bezüglich eines mittleren Potentials $V(R)$ und die Summation erstreckt sich über alle Trajektorien die zu der Ablenkung (θ, ϕ) führen.

Die Streumatrix (S_{ij}) beschreibt wie aus einer vorgegebenen Anfangsbesetzung der Zustände zur Zeit $t=-\infty$ bei der Streuung eine resultierende Besetzung zur Zeit $t=\infty$ nach dem Stoß entsteht:

$$3.32 \quad a_i(t=\infty) = \sum_j S_{ij} a_j(t=-\infty) \quad i, j = 1, 2$$

Die Streumatrix ist über die Partialwellenentwicklung mit dem differentiellen Streuquerschnitt verknüpft.

3.33

$$\frac{d\sigma_{ij}}{d\Omega} = \frac{2}{k_i k_j} \sum_l (2l+1) (S_{ij} a_j - \delta_{ij}) P_l(\cos \theta) l^2$$

Dabei ist l der Drehimpuls des Stoßsystems, der durch $l = \mu v b$ mit dem Stoßparameter b zusammenhängt.

Die neuesten theoretischen Berechnungen des superelastischen Streuquerschnitts des $3^2\text{P} - 3^2\text{S}$ Übergangs in Na_2^+ wurden auf Grund der hier diskutierten experimentellen Ergebnisse von R.Alan und H.Korsch in Kaiserslautern durchgeführt /AK84/. Es wurden verschiedene Verfahren (Landau-Zener Methode, Phasen-Integral Methode, Magnus Näherung und ein voll quantenmechanisches Verfahren) angewendet und miteinander verglichen.

Ihre Berechnung der Streumatrixelemente mit der Magnusapproximation gab die gemessenen differentiellen Wirkungsquerschnitte am besten wieder, sodaß sie in dieser Arbeit zum Vergleich herangezogen wurde. Eine ausführliche Darstellung dieses Verfahrens findet man in /Child/.

3.5 Der Alignmentwinkel γ und die Orientierung P_3 im Streuprozeß

Die Fragestellung ist die Folgende:

Man betrachte einen Ion-Atom Stoß wobei das Atom elektronisch angeregt ist und einen elektronischen Drehimpuls $L \neq 0$ hat. Ist die Wechselwirkung zwischen den Stoßpartnern klein, so bleibt der Drehimpuls raumfest stehen. Dies ist der Fall bei zB. großen Stoßparametern oder hohen Geschwindigkeiten. Ist dagegen die Wechselwirkung stark, d.h. kleine Stoßparameter oder kleine Geschwindigkeiten, so ist es sinnvoll die Kernverbindungsachse des Molekülsystems als Quantisierungsachse des Drehimpulses zu wählen. Der elektronische Übergang läßt sich durch die Gl.3.28 beschreiben.

Im Streuprozeß werden der Alignmentwinkel γ und die Orientierung P_3 gemessen. Der Alignmentwinkel beschreibt die Stellung der Hauptachse der Ladungsverteilung gegenüber der z^{col} -Achse. Die Orientierung P_3 ist identisch mit dem Erwartungswert des während des Stoßes übertragenen Drehimpulses

Die numerische Lösung der gekoppelten Differentialgleichungen 3.28 für drei Zustände ($1^2 \Sigma_u$, $1^2 \Pi_u$ und $2^2 \Sigma_u$) mit den tatsächlichen Potentialen und Kopplungen ergibt die komplexen Besetzungsamplituden der elektronischen Zustände.

Sei

$$3.34 \quad c_\pi = a_\pi \exp\left(-i \int_{-\infty}^t V_{\pi\pi}(t') dt'\right)$$

die Amplitude des $1^2 \Pi_u$ und

$$3.35 \quad c_\sigma = a_\sigma \exp\left(-i \int_{-\infty}^t V_{\sigma\sigma}(t') dt'\right)$$

die des $2^2 \Sigma_u$ -Zustandes.

Die Meßgrößen hängen mit den streutheoretischen Besetzungsamplituden in folgender Weise zusammen /HSBM84/:

3.36

$$\gamma = \pi/2 - 1/2 \arg((|c_{\pi}|^2 - |c_{\sigma}|^2)/2 + i \operatorname{Re}(c_{\sigma} c_{\pi}^*))$$

Der Erwartungswert des Drehimpulses der Ladungsverteilung ergibt sich zu:

3.37 $\langle L_y \rangle = -2 \operatorname{Im}(c_{\sigma} c_{\pi}^*)$

Dabei muß für 3.36 und 3.37 gelten:

3.38 $|c_{\sigma}|^2 + |c_{\pi}|^2 = 1$

Über die Meßgrößen Alignmentwinkel γ und Orientierung P_3 des Streuprozeßes ist es möglich Streutheorien auf ihre Gültigkeit zu überprüfen.

Das Verhalten des elektronischen Drehimpulses bezüglich des molekularen und raumfesten Koordinatensystems wurde von Grosser /G81/ in einen $^1S - ^1P$ Atom-Atom Stoß für ein $1/R^3$ Potential in einer einfachen Näherung diskutiert.

4. THEORIE DER MESSUNG

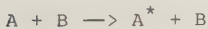
4.1 Einführung

In den letzten Jahren wurden immer komplexere Experimente durchgeführt, die Einblicke in die Details der Dynamik atomarer und molekularer Stoßprozesse geben. Die genaue Untersuchung von Schwerteilchenstößen durch die Analyse von Richtung und Polarisation des emittierten Lichts nach einer Stoßanregung erlaubt es im Prinzip, die Bevölkerungsamplituden der magnetischen Unterniveaus des angeregten Zustandes zu bestimmen. Die experimentell bestimmbaren Größen aus denen man die Amplituden bestimmen kann sind das Alignment und die Orientierung der stoßinduzierten Ladungsverteilung. Eine solche Untersuchung der magnetischen Unterniveaus ergibt ein differenziertes Bild der Vorgänge während eines Schwerteilchenstoßes.

Zur Bestimmung dieser Parameter wurden zwei Verfahren entwickelt

i) Das Koinzidenzverfahren /MJ71/,/EAS73/

Man mißt die Polarisation und die Richtung des emittierten Photons in Koinzidenz mit dem gestreuten Teilchen bei dem Prozeß



A sei ein Atom, dessen Zustand sich während des Stoßes ändert und B der Stoßpartner, z.B. ein Elektron, Atom oder ein Ion.

ii) Streuung an laserangeregten Atomen /MH74/

Das Atom wird optisch in einem quantenmechanisch definierten Zustand präpariert und an ihm gestreut. Gemessen werden die Streuintensitäten in Abhängigkeit von dem Streuwinkel und der Polarisation des anregenden Laserlichts. Man betrachtet also den Prozeß

$$A^* + B \longrightarrow A + B$$

Beide Verfahren sind äquivalent und liefern die gleichen Aussagen, da eines die Zeitumkehr des anderen darstellt. Genauer, es gilt für die Streuamplitude der Stoßanregung $f(AB \rightarrow A^*B)$ und die der Stoßabregung $f(A^*B \rightarrow AB)$ wegen Zeitumkehr und Paritätsinvarianz die Beziehung

$$f(AB \rightarrow A^*B) = f^*(A^*B \rightarrow AB) \quad /Tay 72/$$

Solche Polarisationsstudien, die eine vollständige Dichtematrix des stoßinduzierten Zustandes ergeben, wurden erstmals in der Elektron - Atom Streuung von Hermann et al. durchgeführt./HeH82b/

Die Theorie beider Methoden, bei der Streuamplituden über Streumultipole der Dichtematrix in Zusammenhang mit den beobachtbaren Größen gebracht wird, wurde von Macek und Hertel entwickelt /MH74/ und von Hertel und Stoll in eine kompakte Form gebracht./HS78/. Eine weitere Verbesserung und eine größere Anschaulichkeit der Theorie wurde durch die Einführung des "natürlichen" Koordinatensystems durch Hermann und Hertel erzielt. /HeH82/.

In diesem Kapitel sollen nun kurz die wichtigsten Teile der Theorie rekapituliert und der Gedankengang aufgezeigt werden.

4.2 Der Optische Pumpprozeß

Für Streuexperimente an laserangeregten Atomen ist eine genaue Kenntnis der optischen Anregung unerlässlich. Deshalb werden die wichtigsten Grundlagen und Eigenschaften des optischen Pumpprozesses im Folgenden kurz beschrieben. Eine ausführliche theoretische Betrachtung findet man in den Veröffentlichungen /HS74/ und /HS78/. Experimentelle Untersuchungen der optischen Anregung von Natrium wurden von Fischer /Fi77//FiH82/ durchgeführt um die Abhängigkeit der optischen Orientierung und des optischen Alignment von der Leistungsdichte des Lasers und der Teilchendichte im Na-Atomstrahl zu bestimmen. Die dort gewonnenen Resultate über den optischen Pumpprozeß werden in dieser Arbeit benutzt.

Mit dem optischen Pumpprozeß sollen zwei Ziele erreicht werden:

i) Aufbau einer möglichst hohen Besetzung des angeregten Natrium 3^2P -Zustandes, die räumlich und zeitlich konstant sein soll

und

ii) Aufbau einer bekannten räumlichen Ladungsverteilung, d.h: die Verteilung der Besetzung der M_F -Zustände muß bekannt sein.

Um diesen verlangten Bedingungen zu genügen, müssen folgende Voraussetzungen erfüllt sein:

Um Verluste zu vermeiden, die durch Umpumpen in einen nicht mehr anregbaren Grundzustand entstehen, benötigt man einen geschlossenen Pumpzyklus, der in einem 2-Niveau-System realisiert werden kann. Betrachtet man nun das Termschema von

Natrium (Fig.4.a) und beachtet die Auswahlregeln $F=0, \pm 1$, so erkennt man, daß nur der Übergang $3^2S_{1/2}, F=2 \rightarrow 3^2P_{3/2}, F=3$ diese Bedingung erfüllt. Mithin wird der Laser auf diesen Übergang getunt.

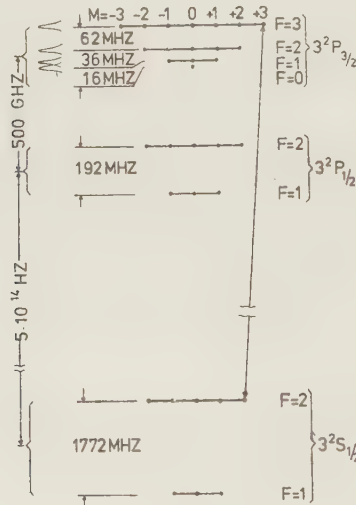


Fig. 4.a Termschema Natrium

Wählt man die Leistungsdichte hoch genug um in den Sättigungsbereich zu gelangen (ca. 100mW/cm²), so hängt die Besetzung des angeregten Zustandes im stationären Fall nur vom statistischen Gewicht (hier 5/8) des F=2-Niveaus des Grundzustandes ab. Theoretisch könnte man in diesem Fall ca. 31,25% der Grundzustandsatome in den angeregten Zustand pumpen. Experimentell erreicht werden allerdings maximal 15%. Wichtig ist, daß die Leistungsdichte des anregenden Lasers für lineare Polarisation nicht zu hoch gewählt wird um nicht durch Sättigungsverbreiterung des F = 3 Niveaus ein Überlapp mit anderen F-Zuständen zu erhalten. Dann würden

durch spontane Übergänge in das andere Grundzustandsniveau eine Entvölkerung des angeregten Zustandes eintreten. Die kritische Leistungsdichte beträgt ungefähr 150 mW/cm^2 , so daß experimentell mit 100 bis 120 mW/cm^2 Laserleistung gearbeitet wurde /FiH82/

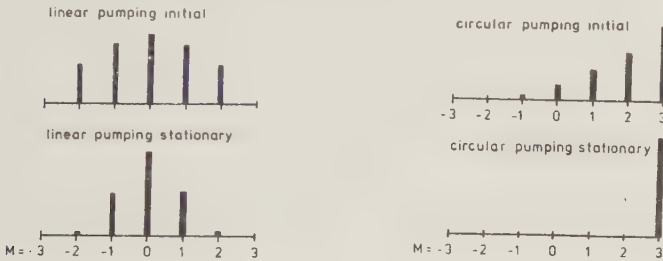


Fig.4.b Besetzung der M_F -Niveaus nach einem Pumpzyklus und stationärer Zustand für Pumpen mit linear und zirkular polarisiertem Licht

Durch den optischen Pumpprozeß, der aus einer wiederholten Folge von Absorption und Emission besteht, entsteht nach ca. 15 Pumpzyklen für linear polarisiertes Licht und ca. 60 Zyklen für zirkular polarisiertes Licht ein stationäres Gleichgewicht wie in Fig.4.b dargestellt ist /HS78/. Durch die spontane Emission wird für die Anregung mit linear polarisiertem Licht ein inkohärentes Gemisch von M_F -Zuständen erzeugt, man erhält ein optisches "Alignment"

$$4.1 \quad a_0^{l=4} = \frac{\frac{I_{\max}}{I_{\min}} - 1}{g_2 \left(\frac{I_{\max}}{I_{\min}} \right)} \quad /FiH82/$$

mit $g_2 = -1/15$

Dieses Alignment wird aus der Messung des Fluoreszenzverlaufs beim Drehen des E-Vektors um 2π bestimmt, wobei $I_{\max}$ die maximale Fluoreszenzintensität für $\theta_E = 90^\circ$ und $I_{\min}$ die minimale Intensität für $\theta_E = 0^\circ$ ist.

Nimmt man nun als Basisfunktionen keine sphärischen Kugelfunktionen, sondern die in der Chemie gebräuchlichen reellen Kugelfunktionen, die anschaulich durch die atomaren p-Orbitale p_x , p_y und p_z dargestellt werden, so wird durch das optische Pumpen mit linear polarisiertem Licht kein reines p-Orbital, das einem quantenmechanisch reinen Zustand entspräche, präpariert, sondern ein inkohärentes Gemisch von p_z , p_y , p_x -Orbitalen im Besetzungsverhältnis 2,5:1:1. Da wegen der Inkohärenz keine zeitlich konstante Phasenbeziehung zwischen den einzelnen p-Orbitalen besteht, kann man die Streudaten ohne weiteres auf eine "reine" p-Keule zurückrechnen.

Bei zirkularer Polarisation erhält man stationär einen reinen Zustand $M_F = \frac{1}{2}$, man präpariert eine "Orientierung". Zur Auswertung der Daten zur zirkularen Polarisation wurden die von Fischer-Hertel /FiH 82/ gemessenen Werte benutzt.

Experimentell müssen noch einige Randbedingungen erfüllt sein um optimale Pumpbedingungen zu erhalten.

Im Streuzentrum dürfen keine Magnetfelder auftreten, da sie das optische Alignment über den Zeemann-Effekt zerstören würden /FiH82/. Die Besetzung der M_F -Niveaus würde durch das Magnetfeld verändert, sodaß der optische Pumpprozeß nicht das maximal mögliche stationäre Alignment erreichen würde. Deshalb wird das Erdmagnetfeld mit Helmholtzspulen auf besser als 5 mG am Ort des Streuzentrums kompensiert.

Die Dichte des Natriumstrahls muß kleiner als 10^{11} Teilchen/sec sein, um Radiation Trapping zu vermeiden. Bei größeren Dichten wird die spontane Fluoreszenz von den Atomen im Strahl wieder absorbiert. Da sich die Polarisation der spontanen Emission von der des Laserstrahls unterscheidet, wird der Aufbau des optischen Alignments vermindert.

4.3 Zusammenhang zwischen Streurate und Dichtematrix des stoßinduzierten Zustandes

In diesem Kapitel sollen die wichtigsten Schritte aufgelistet werden, die von der gemessenen Streurate zur Dichtematrix des zeitumgekehrten stoßangeregten Zustandes führen. Man betrachte den Streuprozess eines Teilchens B (z.B. ein Ion) an einem laserangeregten Atom A^* , das sich im Zustand njm befindet. Nach dem Stoß befindet sich das Atom im Zustand A' , der durch die Quantenzahlen $n'j'm'$ beschrieben wird. Das Teilchen B ändert seinen Zustand nicht.



Das beobachtete Streusignal ist der Überlappung des optisch präparierten und des stoßinduzierten Zustandes proportional.

$$4.2 \quad I(\theta_{col}) \sim \text{Tr } \rho \cdot \sigma$$

$$\sim \sum_{m m'} \rho_{mm'} \sigma_{m'm}$$

Dabei beschreibt der Dichteoperator ρ das Atom, das durch den zeitumgekehrten Stoßprozess aus einer isotropen $n'j'$ Zustandsverteilung angeregt wurde.

Die laseroptische Anregung des Atoms wird durch den statistischen Operator σ beschrieben /HS78/, der in einer $|Fm_F\rangle$ -Basis dargestellt wird. In dem vorliegenden Fall wird der $3^2S_{1/2}, F=2 \longrightarrow 3^2P_{3/2}, F=3$ Übergang des Natrium optisch gepumpt. Diese Anregung wird am einfachsten in einem speziellen "Photonen-Koordinatensystem" beschrieben. Für linear polarisiertes Licht wird die z-Achse in Richtung des E-Vektors, für zirkular polarisiertes Licht in Richtung der Ausbreitungsrichtung des Lichts gelegt.

Diese Wahl des Koordinatensystems diagonalisiert die optische Dichtematrix:

$$4.3 \quad \sigma_{mm'} = \delta_{mm'} w^k(m)$$

Als nächsten Schritt zur Umformung von Gleichung 4.2 entwickelt man die Dichtematrixelemente $\sigma_{mm'}$ und $\rho_{mm'}$ nach irreduziblen Multipolmomenten vom Rang k /BS68/.

$$4.4 \quad \rho_{mm'} = \sum_{kq} \rho_{kq} \langle kq | FF - mm' \rangle (-1)^{K-F-m}$$

$$4.5 \quad \sigma_{mm'} = \delta_{mm'} \sum_k w(k) \langle k0 | FF - mm' \rangle (-1)^{K-F-m}$$

Einsetzen von 4.3, 4.4 und 4.5 in Gleichung 4.2 ergibt für die gemessene Streuintensität die folgende Proportionalität:

$$4.6 \quad I \sim \sum w^k(F) \rho_{k0}(F)$$

Nun ersetzt man die Multipolmomente mit Hilfe des Wigner-Eckart Theorems durch /BS68/

$$4.7 \quad w^k(F) = v^{(k)}(F) \langle T_{k0+}(F) \rangle^{\text{pump}} \sum_{m=-j}^j \sigma_m$$

$$4.8 \quad \rho_{k0}(F) = v^{(k)}(F) \langle T_{k0+}(F) \rangle^{\text{col}}$$

Dies führt zu einem in den Streumultipolmomenten und optischen Multipolen symmetrischen Ausdruck für die Streuintensität /FiH82/:

$$4.9 \quad I \sim \sum_{k=0}^{k_{\max}} ((v^k(F))^2 \langle T_{k0+}(F) \rangle^{\text{pump}} \langle T_{k0+}(F) \rangle^{\text{scat}})$$

Da hyperfeinoptisch gepumpt wird, findet die Beschreibung der Multipole in einer $|Fm_F\rangle$ - Basis statt.

Für die stoßinduzierten Multipole können während der Wechselwirkungszeit des Ions mit dem Atom ($\tau_{\text{col}} = 8 \cdot 10^{-13}$ s) weder der Kernspin I ($\tau_{\text{HFS}} \sim 10^{-9}$ s) noch der Elektronenspin S ($\tau_{\text{FS}} \sim 10^{-12}$ s) zusammen mit dem Bahndrehimpuls zu einem Gesamtdrehimpuls F bzw. J koppeln. Deshalb ist der stoßinduzierte Zustand bezüglich des Bahndrehimpulses L zu quantisieren. In dieser Situation ist die Percival-Seaton-Hypothese (/PS57/ und /PS58/) gültig:

Wenn die Summe der Bahndrehimpulse der Elektronen des Atoms und des stoßenden Teilchens L im Verlauf des Stoßes keine merkliche Wechselwirkung mit den übrigen Drehimpulsen des Systems erfährt, dann wählt man die Zustände $|L m_L\rangle$ des stoßangeregten Systems als Basis der Dichtematrixdarstellung.

Das Wigner-Eckart-Theorem ermöglicht es, die Multipole in F in solche in L umzuschreiben. Der dabei in Gleichung 4.9 auftretende Koppelfaktor lautet:

$$4.10 \quad v^{(k)}(F) = v^{(k)}(L) (2F+1)(2J+1) \begin{Bmatrix} FFk \\ J J L \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} J J k \\ L L S \end{Bmatrix}$$

wobei $v^{(k)}(L)$ gegeben ist durch

$$4.11 \quad v^{(k)}(L) = \frac{2^k (2k+1)^{1/2}}{k!} (-)^{2L} \left(\frac{(2L-k)!}{(2L+k+1)!} \right)^{1/2}$$

Der Streuprozess wird konventionellerweise im "collision"-System beschrieben, das folgendermaßen definiert ist:

Die Streuebene wird durch die Richtung des einlaufenden und des auslaufenden Teilchens definiert. Dabei zeigt die z-Achse in Richtung von k_{in} , k_{in} und k_{out} liegen in der x-z Ebene und y_{col} steht senkrecht auf der Streuebene.

Als nächstes muß nun der Ausdruck für die Streuintensität vom Photonen-System in das collision-System transformiert werden. Diese Drehung erfolgt in diesem Fall mit reellen Kugelfunktionen (/MH74/ Gl.11) . Es stellt sich heraus, daß die Beschreibung der Streuung im "collision"-System zu unanschaulichen physikalischen Parametern führt. Zur Lösung des Problems wurde das "natürliche"-Koordinatensystem eingeführt /HH82/. In ihm ist die Dichtematrix des angeregten Zustandes sehr vereinfacht und erlaubt eine direkte physikalische Interpretation der Daten. Die grundlegende Idee ist:

Da Drehimpuls nur senkrecht zur Streuebene übertragen werden kann, ist es naheliegend in diese Richtung die z^{nat} -Achse des natürlichen Koordinatensystems zu legen.

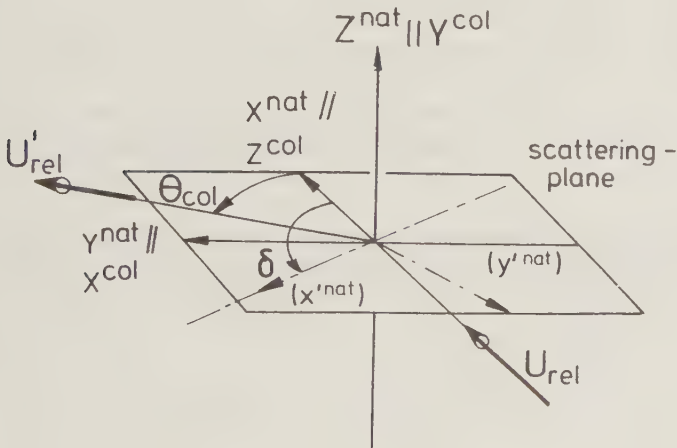


Fig 4.c Das natürliche Koordinatensystem

Um die Dichtematrix zu berechnen benutzt man zweckmäßigerweise die folgenden zwei Sätze von Basisfunktionen:

i) Will man den Drehimpulsübertrag im Stoß diskutieren, so benutzt man eine Basis aus Eigenfunktionen zu L_z und L^2 . Sie sind komplexe Funktionen und man bezeichnet die Zustände mit $|1\rangle$, $|0\rangle$ und $|-1\rangle$. Dabei ist z^{nat} die Quantisierungsachse.

ii) Zur Diskussion der Ladungsverteilung im Stoß eignen sich mehr die Eigenfunktionen zu L^2 und L_z^2 als Basisfunktionen.. Sie sind reelle Funktionen, die man als die Orbitale $|p_x\rangle$, $|p_y\rangle$, und $|p_z\rangle$ bezeichnet

Es ergeben sich für die beiden Darstellungen die folgenden Dichtematizen:

4.12

$$\rho = \begin{pmatrix} \rho_{11} & 0 & \rho_{1-1} \\ 0 & \rho_{00} & 0 \\ \rho_{-11} & 0 & \rho_{-1-1} \end{pmatrix}$$

4.13

$$\rho = \begin{pmatrix} \rho_{xx} & \rho_{xy} & 0 \\ \rho_{xy} & \rho_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \rho_{zz} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \rho_{\sigma\sigma} & \rho_{\sigma\pi^+} & 0 \\ \rho_{\pi^+\sigma} & \rho_{\pi^+\pi^+} & 0 \\ 0 & 0 & \rho_{\pi^-\pi^-} \end{pmatrix}$$

Die verwendeten Transformationsformeln lauten:

4.14

$$\rho_{zz} = \rho_{00}$$

$$\rho_{xx} = 1/2(\rho_{-1-1}^{-2} + \rho_{-11}^{+1} + \rho_{11})$$

$$\rho_{yy} = 1/2(\rho_{-1-1}^{+2} + \rho_{-11}^{+1} + \rho_{11})$$

In der Dichtematrixdarstellung bezüglich der $|Lm_L\rangle$ Basis geben die Diagonalelemente ρ_{11} , ρ_{00} und ρ_{-1-1} die relativen Wirkungsquerschnitte für die Besetzung der Zustände $|1\rangle$, $|0\rangle$ und $|-1\rangle$ an. Sie sind reelle Zahlen. Die Reflexi-

onssymmetrie der Zustände $|1\rangle$ und $|-1\rangle$ ist positiv, die des Zustandes $|0\rangle$ negativ.

Die komplexen Nichtdiagonalelemente beschreiben die Kohärenz zwischen den einzelnen Zuständen. Da die Zustände $|1\rangle$ und $|0\rangle$ verschiedene Reflexionssymmetrien bezüglich der Streuebene haben, können sie durch eine Stoßanregung nicht kohärent besetzt werden. Dasselbe gilt für die Zustände $|-1\rangle$ und $|0\rangle$.

Für den Fall der $S \rightarrow P$ Anregung sind also ρ_{10} und ρ_{0-1} identisch Null.

Die Zustände $|1\rangle$ und $|-1\rangle$ können wegen gleicher Reflexionssymmetrie kohärent besetzt werden und das Matrixelement ρ_{1-1} ist ungleich Null.

Man kann es kurz so ausdrücken:

Die Nichtdiagonalelemente sind dann ungleich Null, wenn Streuamplituden gleicher Symmetrie mischen.

Die vier verbleibenden Parameter der Dichtematrix können durch einen Satz von drei Messungen bestimmt werden /HH82/:

(Im Folgenden sind alle Dichtematrixelemente im natürlichen Koordinatensystem dargestellt. Deshalb entfällt der obere Index nat)

i) Einschluß des linear polarisierten Laserlichts senkrecht zur Streuebene und Drehen des E-Vektors um den Winkel θ_E ergibt die Streuintensität

4.15

$$I^{\text{perp}}(\theta_E) = 1 - n_2^{\text{lin}} (1 - 3\rho_{00} + 6|\rho_{1-1}| \cos 2(\theta_E - \varphi)) / 2$$

wobei

$$4.16 \quad \varphi = \pi/2 - \arg(\rho_{1-1})/2$$

der Alignmentwinkel ist.

ii) Einschluß des linear polarisierten Lasers in der Streuebene. Hier werden zwei Stellungen des E-Vektors herausgegriffen:

E-Vektor parallel zur Streuebene:

$$4.17 \quad I_{\text{inpl}} = I^{\text{perp}}(\theta=0^\circ) \\ = 1 + n_2^{\text{lin}}(1 - 3 \rho_{00} - 6 \text{Re}(\rho_{1-1})) / 2$$

E-Vektor senkrecht zur Streuebene:

$$4.18 \quad I_{\text{inpl}} = 1 + n_2^{\text{lin}}(1 - 3 \rho_{00})$$

iii) Einschluß von zirkular polarisiertem Licht senkrecht zur Streuebene ergibt das Asymmetrieverhältnis:

$$4.19 \quad P_3 = (I(\text{RHC}) - I(\text{LHC})) / (I(\text{RHC}) + I(\text{LHC}))$$

Je nachdem ob der Laserstrahl parallel oder antiparallel zur z^{nat} -Achse läuft, ergibt sich für den Erwartungswert des übertragenen Drehimpulses:

$$4.20 \quad P_3 = \pm |L_z\rangle$$

In Dichtematrixelementen ausgedrückt:

$$4.21$$

$$P_3 = \frac{3n_1^{\text{zirk}}(\rho_{-1-1} - \rho_{11})}{2 - n_1^{\text{zirk}}(1 - 3\rho_{00})}$$

Die optischen Konstanten (Multipolmomente der optischen Anregung) in den Formeln 4.15 bis 4.21 ergeben sich aus den folgenden Beziehungen /HeH82/:

$$4.22 \quad n_2^{\text{lin}} = a_0(L) / 2$$

$$4.23 \quad n_2^{\text{zirk}} = -a_0(L)$$

$$4.24 \quad n_1^{\text{zirk}} = |O_0(L)|$$

Dabei sind $a_0(L)$ und $O_0(L)$ die optischen Alignment und Orientierungsparameter.

Ein Meßzyklus zur Bestimmung der Dichtematrixelemente beinhaltet die Messungen i) bis iii), wobei die Art der Anregung angegeben ist und die erhaltenen Meßgrößen.

i) Anregung : Lineare Polarisation out-of-plane:

Meßgrößen:

Alignmentwinkel

$$\frac{I_{\text{max}}^{\text{perp}}}{I_{\text{min}}^{\text{perp}}} := V_1$$

opt. Alignment out of plane: n_2^p

ii) Anregung: Lineare Polarisation in-plane

Meßgrößen:

$$\frac{I_{\text{max}}^{\text{inpl}}}{I_{\text{min}}^{\text{inpl}}} := V_2$$

opt. Alignment in-plane: n_2^i

iii) Anregung: Zirkulare Polarisation out-of-plane

Meßgrößen:

$$P_3$$

Die tiefgestellten Indizes max und min bedeuten jeweils das Maximum bzw. Minimum der jeweiligen Streuintensität.

Unter Berücksichtigung der Geometrie des Experiments ergeben sich folgende Auswerteformeln für die Dichtematrixelemente:

4.25

$$\rho_{00} = \frac{\frac{1}{2} n_2^P + V_2(1 + n_2^i) - 1 + \frac{V_1 - 1}{V_1 + 1} \left(\frac{n_2^P}{2} - 1 \right) \cos \gamma}{3(V_2 n_2^i + \frac{n_2^P}{2} (1 + \frac{V_1 - 1}{V_1 + 1} \cos 2\gamma))}$$

4.26

$$|\rho_{1-1}| = \left(\frac{\rho_{00}}{2} + \frac{1}{3n_2^i} - \frac{1}{6} \right) \frac{1 - V_1}{1 + V_1}$$

4.27

$$\rho_{11} = 1 - \rho_{00} - \rho_{-1-1}$$

4.28

$$\rho_{-1-1} = \frac{1}{2}(1 - \rho_{00}) - P_3 \frac{2 + n_2^Z (3\rho_{00} - 1)}{6n_1^Z}$$

Die optischen Alignmentparameter n_2^P und n_2^i werden aus dem Fluoreszenzsignal in-plane (i) bzw. out-of-plane (P) bestimmt ($I_{\perp}$ = E-Vektor $\perp$ Na-Strahl, $I_{\parallel}$ = E-Vektor $\parallel$ Na-Strahl):

4.29

$$n_2^x = -2(I_{\perp}/I_{\parallel} - 1)/(I_{\perp}/(2I_{\parallel}) + 1) \quad x = p, i$$

Die beiden anderen optischen Parameter n_2^Z und n_1^Z werden aus /FiH 82/ entnommen.

Die Bestimmung der in der Auswertung auftretenden Verhältnisse von Intensitäten erfolgt durch Anfitzen einer Gaußkurve

4.30

$$y = A + B \sin x + C \cos x$$

an die Meßwerte.

5. DER ÜBERGANG $3^2P_{3/2} \rightarrow 3^2S_{1/2}$: MESSERGEBNISSE UND DISKUSSION

5.1 Einleitung

In dem folgenden Kapitel werden die Messungen vorgestellt, diskutiert und mit theoretischen Rechnungen verglichen. Eine vollständige semiklassische Behandlung des 3-Zustandssystems wurde nach dem in Kap.3. beschriebenen Verfahren durchgeführt. Weitere theoretische Betrachtungen liegen von Grosser /G81/ für die Polarisationsstudien und von Alan und Korsch /AK84/ für die differentiellen Streuquerschnitte vor.

Man kann die Messungen in zwei Kategorien unterteilen.

Die erste Kategorie ist das "klassische Streuexperiment". Dort untersucht man die $1^2\Pi_u - 1^2\Sigma_u$ Potentialkreuzung durch Messung des differentiellen Streuquerschnittes für verschiedene Energien im Bereich $30\text{eV} \leq E_{\text{Lab}} < 100\text{eV}$. Zusammen mit den Rechnungen erhält man Aussagen über die Lage der Kurvenkreuzung und die Qualität der Potentiale.

Die zweite Art von Messungen faßt man unter dem Begriff "Polarisationsstudien" zusammen. Gemessen wird die Streuintensität in Abhängigkeit von

i) der Polarisationsrichtung bei linear polarisiertem Licht für eine "In-Plane" Anregung (Laserstrahl liegt in der Streuebene) und für eine "Out-of-Plane" Anregung (Laserstrahl steht senkrecht auf der Streuebene)

ii) dem Drehsinn bei einer Out-of-Plane Anregung mit zirkular polarisiertem Licht. Man erhält das Asymmetrieverhältnis P_3 .

Über die Polarisationsstudien lassen sich die komplexen Besetzungsamplituden der elektronischen Zustände des stoßangeregten Atoms bestimmen.

Der detaillierte Einblick in die Dynamik des Stoßprozesses ermöglicht ein besseres Verständnis der Fragen

"Wie bildet sich aus zwei Atomen ein Molekül ?"

bzw.:

"Wie entwickeln sich molekulare Zustände aus den atomaren ?"

Diese Fragen sind von grundsätzlicher Bedeutung für die gesamte Chemie und die experimentellen Ergebnisse dieser Arbeit tragen zu ihrer Beantwortung bei. Man kann nun den Bereich angeben in dem der Übergang vom raumfesten (atomaren) in das molekulare Koordinatensystem vor sich geht, und die Projektion des elektronischen Drehimpulses auf die Kernverbindungsachse eine gute Quantenzahl wird.

Aus dem Alignmentwinkel, der als Winkel zwischen der Hauptachse der Ladungsverteilung und der z^{col} -Achse definiert ist, sowie der apparativen Meßgeometrie kann man auf den effektiv repulsiven oder attraktiven Charakter des Wechselwirkungspotentials schließen. Das gemessene Asymmetrieverhältnis P_3 der zirkularen Polarisierung ergibt den beim Stoß übertragenen Drehimpuls $\langle L_y \rangle$

Insgesamt bekommt man aus den Polarisationsgrößen ein detailliertes Modellbild der "Molekülbildung" im Streuprozeß.

Aus den gerechneten quantenmechanischen Besetzungsamplituden der elektronischen Zustände bildet man die theoretischen Alignment- und Orientierungsparameter und vergleicht sie mit den experimentellen. Somit ist das erhaltene Modellbild von beiden Seiten gesichert.

Die Polarisationsmessungen ergeben die komplette Dichtematrix des stoßangeregten (zeitumgekehrten) $\text{Na}(3P)$ -Zustandes. In ihr sind die Aussagen über Kohärenz der Anregung und relativen Besetzungsamplituden der magnetischen Unter-niveaus enthalten. Für diese Auswertung wird die Gültigkeit der Percival-Seaton-Hypothese /PS57/, /PS58/ vorausgesetzt.

5.2. Differentielle Streuquerschnitte

5.2.1 Der molekulare Übergang $1\Pi_u \rightarrow 1\Sigma_u$ im Na_2^+

Die Potentialkurven in Kap II zeigen eine Kurvenkreuzung bei $R_c=4.9$ a.u. des angeregten $1\Pi_u$ Potentials mit dem repulsiven $1\Sigma_u$ Grundzustand. Asymptotisch differieren diese Potentiale um 2.1 eV, was der Energiedifferenz $\text{Na}(3S) - \text{Na}(3P)$ entspricht.

An dieser Kreuzung sind die Matrixelemente der Rotationskopplung ungefähr gleich 1. Somit ist die Übergangswahrscheinlichkeit hoch.

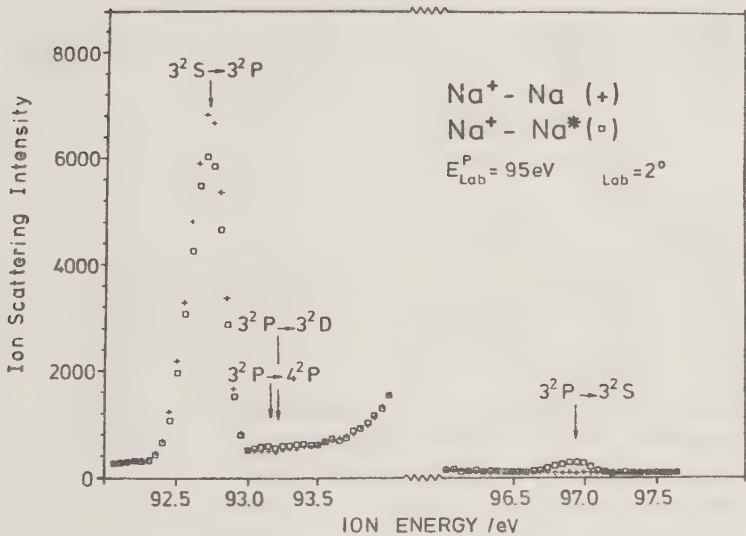


Fig. 5.a Energiescan, $E_{\text{cm}}=47.5\text{eV}$. $\theta_{\text{cm}}=4^\circ$

Fig. 5.a zeigt ein Energieverlustspektrum bei einer festen Primärenergie $E_{\text{lab}} = 95 \text{ eV}$ des Ionenstrahls und einem Streuwinkel $\theta_{\text{lab}} = 2^\circ$ im Laborsystem. Die Nachweisenergie wird hier variiert. Die Kinematik des Na_2^+ Systems ist sehr einfach. Die kinetische Energie des Targetatoms beträgt ca. 125 meV . Dies ist gegenüber der Ionenenergie von 30 eV bis 100 eV im Laborsystem vernachlässigbar. Es ergeben sich daher folgende Zusammenhänge zwischen Labor- und CM-System:

$$\begin{aligned} 5.1 \quad E_{\text{cm}} &= E_{\text{lab}}/2 \\ \theta_{\text{cm}} &= 2 \theta_{\text{lab}} \end{aligned}$$

Die Abhängigkeit der Nachweisenergie vom Streuwinkel kann man für diese kleinen Streuwinkel ebenfalls vernachlässigen.

Ohne Laseranregung (+) streut man die Ionen am Grundzustand des Natriumatoms. Man beobachtet auf der inelastischen Seite des Bildes einen scharfen Peak, der dem inelastischen Prozeß



entspricht.

Der Peak der elastischen Streuung bei $E_{\text{lab}} = 95 \text{ eV}$ ist in dieser Darstellung unterdrückt. Bei Nachweisenergien, die größer als $E_{\text{lab}} = 95 \text{ eV}$ sind, ist natürlich kein Streusignal zu sehen. Der inelastische Prozeß $3\text{S} \longrightarrow 3\text{P}$ wurde von /H75/ bereits studiert.

Einschalten des Lasers bewirkt eine Population des $\text{Na}(3^2\text{P})$ -Zustandes. Damit sind weniger Natriumatome im Grundzustand und die Streurrate mit Licht (o) des inelastischen Übergangs nimmt erwartungsgemäß ab. Aus dieser Abnahme (siehe auch Fig.5.b) kann auf eine ca. 12 % ige Besetzung des angeregten Zustandes geschlossen werden.

Auf der superelastischen Seite erkennt man bei einer Energie von 96.9 eV einen kleinen Peak, der zu dem Übergang



gehört, wie man aus der energetischen Lage feststellen kann.

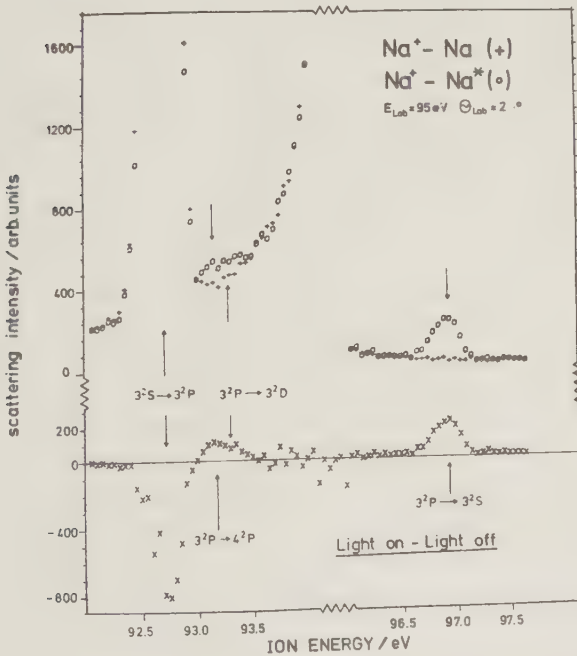


Fig.5.b Differenzspektrum (Licht an - Licht aus)

In Fig.5.b ist der obige Prozeß als ein Differenzspektrum von ($I_{\text{mit Licht}} - I_{\text{ohne Licht}}$) nochmals dargestellt. Die Streuraten dieses Prozesses liegen bei ca. 10 - 15 Ereignissen pro Sekunde, sodaß lange Meßzeiten notwendig sind um den statistischen Fehler zu minimieren. Für eine Nachweisenergie von $E_{\text{Lab}} = 93.2$ deutet sich der Prozeß $3^2\text{P} \rightarrow 3^2\text{D}$ schwach an, der Gegenstand einer weiteren Untersuchung ist und im Rahmen dieser Arbeit nicht mehr behandelt wird /BMH83/,/BMSH84/.

5.2.2 Winkelverteilungen und Energieabhängigkeiten des superelastischen und des inelastischen Übergangs

Die Winkelabhängigkeit des inelastischen $3^2S \rightarrow 3^2P$ und des superelastischen $3^2P \rightarrow 3^2S$ Übergangs bei der Stoßenergie von $E_{cm}=47.5\text{eV}$ ist in Fig.5.c dargestellt.

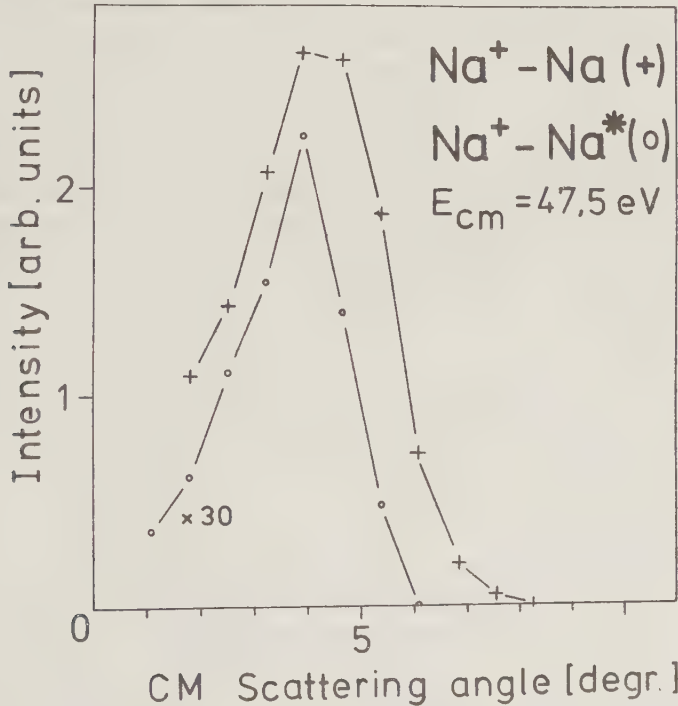


Fig.5.c Differentielle Streuquerschnitte des inelastischen $3S \rightarrow 3P$ und des superelastischen $3P \rightarrow 3S$ Übergangs für die Stoßenergie $E_{cm}=47.5\text{eV}$.

Es ist deutlich ein ausgeprägtes Maximum bei einem Streuwinkel $\theta_{cm}=4^\circ$ zu erkennen, während für kleinere und größere

Winkel die Streuintensität praktisch auf Null zurückgeht. Größere Winkel als im Bild dargestellt wurden ebenfalls ausgemessen um sicherzugehen, daß keine Nebenpeaks auftauchen. Im Rahmen unserer Meßgenauigkeit wurde keine Streuintensität für größere Winkel nachgewiesen.

Unsere Berechnungen der Übergangswahrscheinlichkeit $P(b)$ für die Rotationskopplung in Abhängigkeit des Stoßparameters zeigen, daß nur ein kleiner Stoßparameterbereich von 3.8 a.u. bis 4.6 a.u. zu dem Übergang $3P \rightarrow 3S$ beitragen kann. Das ist in Fig.5.d dargestellt.

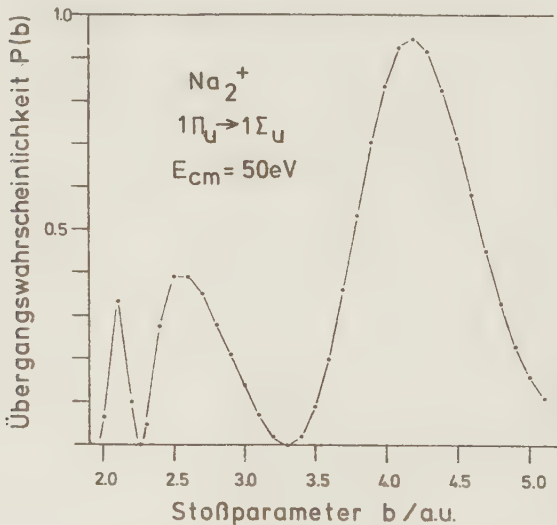


Fig.5.d Übergangswahrscheinlichkeit $P(b)$ in Abhängigkeit des Stoßparameters b für eine Energie $E_{cm} = 45\text{eV}$

Die Oszillationen der Übergangswahrscheinlichkeit für kleinere Stoßparameter (zweiter Peak bei $b=2.5$ a.u) tragen nach 3.33 für den diff. Wirkungsquerschnitt kaum bei. Wegen der Wichtung der Übergangswahrscheinlichkeiten mit dem Stoßparameter ist praktisch nur der Hauptpeak maßgebend.

Anschaulich kann dieses Verhalten so verstanden werden:

In der Stoßparameternäherung ist das Matrixelement der Rotationskopplung proportional zur Winkelgeschwindigkeit $\dot{\Theta}(t)$ der internuklearen Achse des Quasimoleküls im raumfesten System. Da wir praktisch eine gerade Trajektorie für unsere Streuwinkel annehmen können und Übergänge nur für $R \sim R_C$ stattfinden können, gilt:

$$5.4 \quad \dot{\Theta}(t(R_C)) = bv/(R_C)^2$$

wird am größten für einen Stoßparameter $b \sim R_C$. Außerdem ist die Zeit, die im Kreuzungsbereich verbracht wird für $b \sim R_C$ ebenfalls am größten. Also peakt die Übergangswahrscheinlichkeit für diesen Stoßparameter (/MM71/ /AK84/) und der differentielle Streuquerschnitt ist für andere Stoßparameter kleiner. In diesem Energie- und Winkelbereich ist der Streuwinkel Θ_{cm} eine eindeutige Funktion des Stoßparameters b .

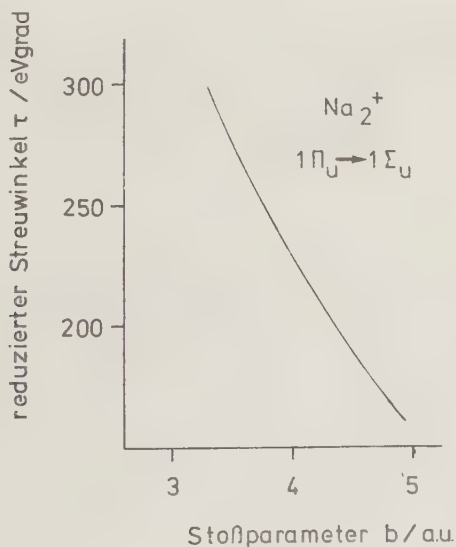


Fig.5.e Klassische Ablenkfunktion

Die Rechnungen von Allan-Korsch /AK84/ mit der Magnusapproximation ergeben eine sehr gute Übereinstimmung des gemessenen Streuquerschnitts mit dem theoretischen für die $1^2\Pi_u - 1^2\Sigma_u$ Kreuzung.

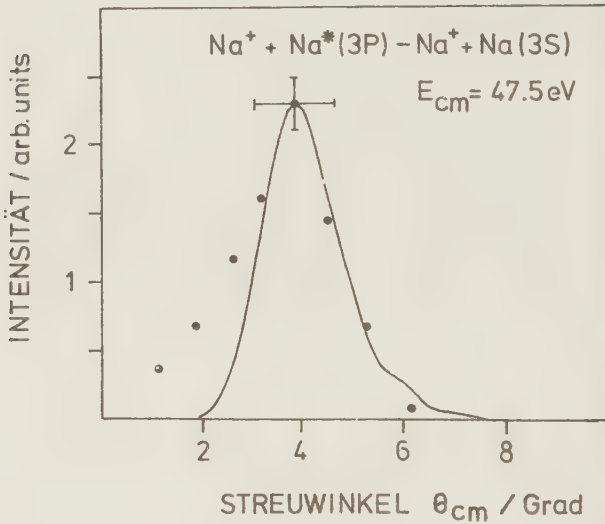


Fig.5.f Vergleich zwischen experimentellem und theoretischen Streuquerschnitt (Rechnungen von Allan-Korsch/AK84/)

Es wurden die inelastischen und superelastischen Streuquerschnitte für Streuenergien zwischen $E_{\text{cm}} = 20 \text{ eV}$ bis 50 eV vermessen. Dabei zeigte sich, daß die Winkelverteilungen alle dieselbe Form wie Fig 5.c zeigen. In diesem Energie- und Winkelbereich ist der reduzierte Streuwinkel $\tau = \theta_{\text{cm}} E_{\text{cm}}$ eine Konstante (Fig.5.e), wobei $\theta_{\text{cm}}(I_{\text{max}})$ der Streuwinkel ist, der zur maximalen Intensität der Streuverteilung gehört.

Auftragen von $\Theta_{\text{cm}}(I_{\text{max}})$ der Prozesse 5.1 und 5.2 gegenüber $1/E_{\text{cm}}$ ergibt jeweils eine Gerade.

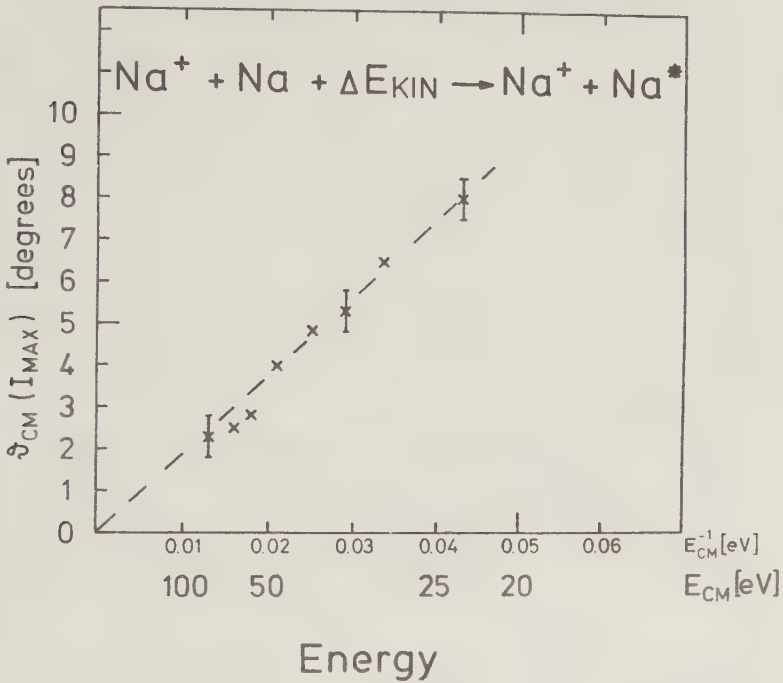


Fig.5.g Reduzierter Streuwinkel als Funktion von $1/E_{\text{cm}}$ für den inelastischen Übergang $3S \rightarrow 3P$

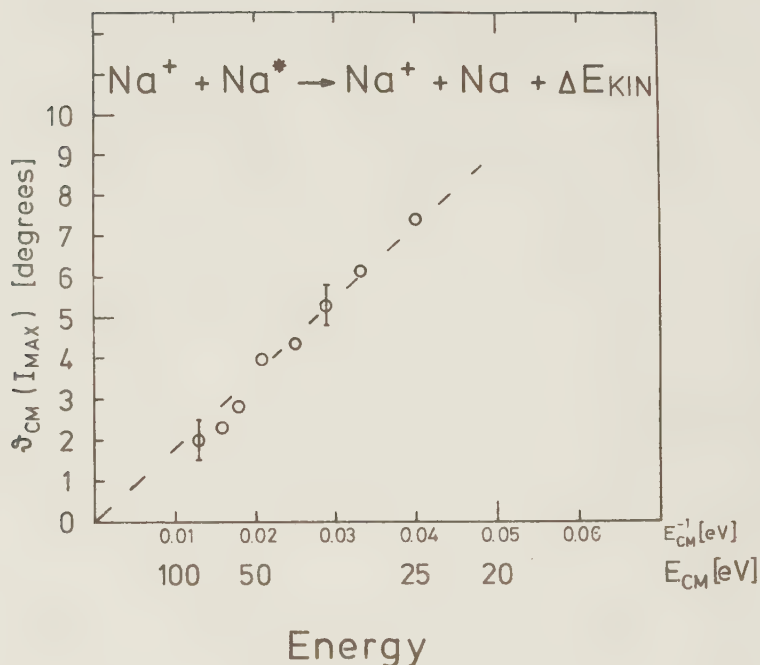


Fig.5.h Reduzierter Streuwinkel als Funktion von $1/E_{\text{CM}}$ für den superelastischen Übergang $3P \rightarrow 3S$

Aus den Geraden ergibt sich ein reduzierter Streuwinkel $\tau = (180 \pm 5)$ eVgrad für beide Prozesse. (Im Folgenden wird nur noch der superelastische Übergang behandelt.) Das bedeutet, daß der Stoßparameterbereich in dem der Abregungsprozeß stattfindet immer der gleiche und von der Energie unabhängig ist. Außerdem kann aus der Geraden gefolgert werden, daß nur ein Prozeß für den Übergang verantwortlich ist, was theoretisch bereits aus den Potentialkurven folgt und nun experimentell bestätigt wurde. Im molekularen Bild ist der Prozeß ein nichtadiabatischer Übergang vom $1 \Pi_u$ -Potential

zum $1\ \Sigma_u$ -Grundzustand, da im Kreuzungsbereich $R_c \sim 4.9$ a.u. Übergänge durch Rotationskopplung möglich sind.

Zusammenfassend findet man in diesem Energiebereich und bei dem Stoßsystem Na_2^+ nur für einen kleinen Stoßparameterbereich den Übergang $1\Pi_u \rightarrow 1\Sigma_u$. Theoretische Rechnungen der Streuquerschnitte unter Zugrundelegung der neuesten Potentialkurven /BHMMSS84/ stimmen mit den gemessenen Werten hervorragend überein. Die Theorie /AK84/ ergibt für das Maximum der Winkelverteilung einen reduzierten Streuwinkel

$$\tau = 179\ \text{eVgrad}$$

was in Übereinstimmung mit dem gemessenen Wert von

$$\tau = (180 \pm 5)\ \text{eVgrad ist.}$$

Dies gilt nicht für sehr kleine Energien und große Streuwinkel, da dann die Approximation mit einer geraden Trajektorie eine schlechte Näherung ist. Für sehr hohe Energien dagegen kann sich die Region der Rotationskopplung wegen der Größe der Winkelgeschwindigkeit über einen größeren Stoßparameterbereich erstrecken.

5.3 Polarisationsstudien

Durch Variation der Polarisation und der Polarisationsrichtung des anregenden Lichts werden die dynamischen Größen des Streuprozesses und die Besetzungsamplituden der angeregten $1\Pi_u$ und $2\Sigma_u$ Potentiale bestimmt. Der Zusammenhang zwischen den Messgrößen und den theoretischen Größen wurde in Kap.4. dargestellt.

Die Polarisationsstudien sind der Kern der vorliegenden Untersuchung und sollen detailliert klären wie sich die atomare Ladungsverteilung bei Annäherung an das Ion in dem einfachen Modell Na_2^+ verhält. Die Ergebnisse der Streuquerschnitte (Kap.5.2) werden zur Erklärung des Polarisationsverhaltens herangezogen.

Zur Bestimmung des differentiellen Streuquerschnitts des Übergangs $1\Pi_u \rightarrow 1\Sigma_u$ ist es nicht wichtig zu wissen, wie die beiden angeregten Potentiale besetzt sind. Die Stellung des Photonenkoordinatensystem bezüglich der Streuebene spielte noch keine Rolle. Um Aussagen über die stoßinduzierten Besetzungsamplituden machen zu können, muß man wissen welche asymptotischen Orbitale durch das optische Pumpen präpariert werden.

Durch die Wahl der Richtung des E-Vektors und der Anregungsgeometrie bei linear polarisiertem Licht bevölkert man asymptotisch bestimmte molekulare Zustände mit einer definierten Amplitude und Phase. Die asymptotischen molekularen Zustände sind bezüglich des Streukoordinatensystems definiert und die Frage ist, wie sie sich in die tatsächlichen molekularen Zustände entwickeln. Im nächsten Abschnitt wird gezeigt, welche Möglichkeiten der Anregung mit linear polarisiertem Licht bezüglich der Streuebene es gibt und welche asymptotischen molekularen Zustände dadurch präpariert werden.

5.3.1. Asymptotische Präparation atomarer Orbitale, das Koordinatensystem

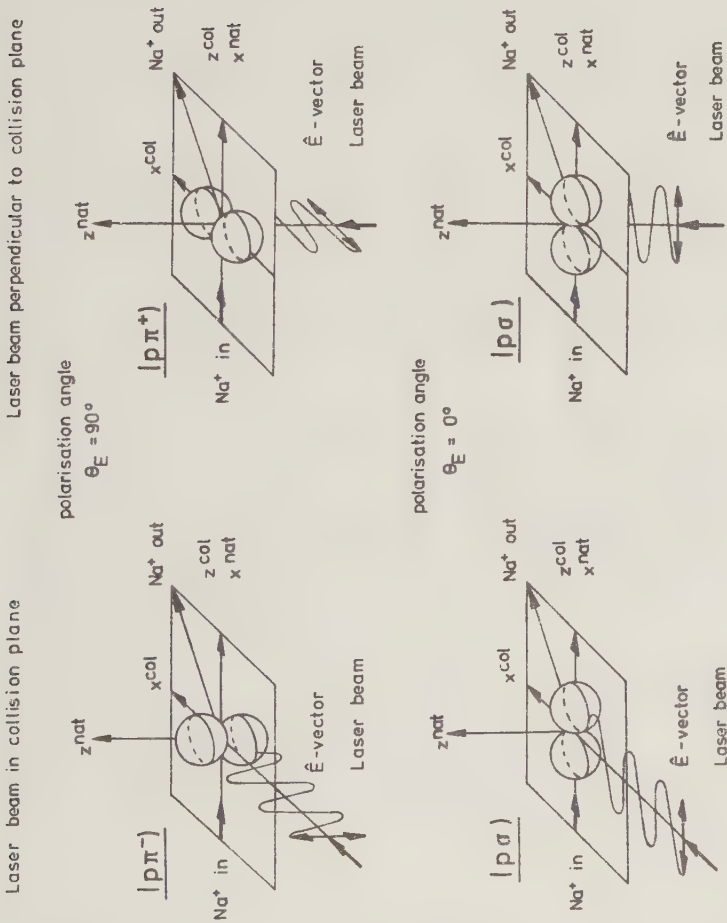


Fig.5.i Asymptotische Präparation atomarer Orbitale

In Fig.5.i ist schematisch dargestellt, welche atomaren Orbitale bei Anregung mit linear polarisiertem Licht bezüglich der Streuebene und der z^{col} -Achse durch die Wahl verschiedener Anregungsgeometrien asymptotisch präpariert werden können. Verändert wird das Photonensystem relativ zum Streusystem. Das angeregte Na^* -Atom wird in der $|LM_L\rangle$ -Basis beschrieben, da der Spin während des Streuprozesses keine Rolle spielt.

Die Streuebene ist durch das einlaufende und auslaufende Ion definiert. Dabei zeigt z^{col} in Richtung des einlaufenden Teilchens. Eingetragen in Fig. 5.i sind sowohl das "collision"- als auch das natürliche Koordinatensystem.

Fig.5.i zeigt zwei prinzipiell unterschiedliche Anregungsgeometrien:

Im linken Teil der Zeichnung liegt der anregende Laserstrahl in der Streuebene (In-plane Einschuß).

Die rechte Seite zeigt die Situation bei Einschuß des anregenden Laserstrahls senkrecht zur Streuebene (Out-of-plane Anregung). Der Polarisationswinkel θ_E ist definiert als der Winkel zwischen dem E-Vektor des anregenden Lichts und der z^{col} -Achse im mathematisch positiven Sinne. Abhängig von diesem Polarisationswinkel θ_E kann man nun für $\theta_E=0^\circ$ bzw. $\theta_E=90^\circ$ asymptotisch $|p\sigma\rangle$ bzw. $|p\pi\rangle$ - Zustände präparieren. Dabei ist die $z^{\text{col}}=x^{\text{nat}}$ -Achse die Quantisierungsachse. Wie man aus dem Schema entnehmen kann sind die $|\sigma\rangle$ -Zustände sowohl für in-plane als auch für out-of-plane Anregung identisch und haben positive Reflexionssymmetrie. Das heißt:

$$5.5 \quad |p\sigma\rangle_{\text{in-plane}} = |p\sigma\rangle_{\text{out-of-plane}}$$

Für die $|\pi\rangle$ - Zustände erkennt man für die in-plane Anregung eine negative Reflexionssymmetrie bezüglich der Streuebene, es wird also ein $|p\pi^- \rangle$ - Zustand erzeugt. Bei

der out-of-plane Anregung findet man eine positive Reflexionssymmetrie und es wird ein $1p \pi^+$ -Zustand angeregt.

Das hier vorgestellte Präparationsschema ist natürlich stark vereinfacht, da durch das optische Pumpen kein reiner Zustand erzeugt wird, sondern ein inkohärentes Gemisch von $1p \sigma$, $1p \pi^+$ und $1p \pi^-$ Zuständen (siehe Kap. opt. Pumpen). Da das Gemisch inkohärent ist, kann man allerdings ohne Schwierigkeiten auf reine Zustände zurückrechnen.

Die Symbole $1p \pi^+$, $1p \pi^-$ und $1p \sigma$ beziehen sich auf die asymptotisch präparierten Orbitale bezüglich der z^{col} -Achse als Quantisierungsachse, also auf das raumfeste Koordinatensystem. Die Symbole Σ und Π bezeichnen die molekularen Zustände bei kleinen Kernabständen, deren Quantisierungsachse die sich im Raum drehende Kernverbindungsachse ist. Man befindet sich dabei im sogenannten körperfesten ("body-fixed") System.

Mit zirkular polarisiertem Licht regt man Out-of-Plane in dem Anregungsschema eine kohärente Mischung eines $1p \pi^+$ und eines $1p \sigma$ Orbitals mit einer Phasendifferenz von $\pi/2$ an.

Entsprechend wäre eine zirkulare In-Plane Anregung eine kohärente Mischung eines $1p \pi^-$ und eines $1p \sigma$ Orbitals mit einer Phasendifferenz von $\pi/2$.

5.3.2 Lineare Polarisationsabhängigkeiten

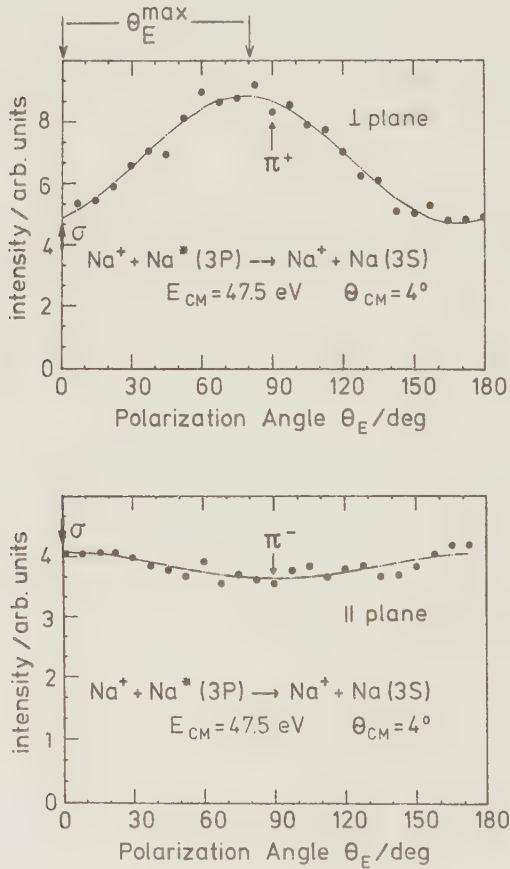


Fig.5.j Lineare Polarisationsabhängigkeit für $E_{\text{CM}}=47.5\text{eV}$ und einem Streuwinkel $\theta_{\text{CM}}=4^\circ$:
 oben: Out-of-Plane Anregung
 unten: In-Plane Anregung

Bei den Messungen der Abhängigkeit des superelastischen Streusignals von der Polarisationsrichtung des anregenden Laserlichts variiert man Θ_E mit Hilfe eines Polarisationsdrehers, sowohl für den in-plane als auch den out-of-plane Einschuß. Man präpariert also die in Fig. 5.i beschriebenen Situationen. Die Primärenergie, Nachweisenergie und Streuwinkel sind feste Parameter.

Aufgetragen ist der Polarisationswinkel Θ_E gegenüber dem Streusignal I. Man beobachtet eine starke Abhängigkeit der superelastischen Streuintensität von Θ_E . Das obere Bild von Fig. 5.j zeigt eine Messung, bei der der Laser senkrecht zur Streuebene einfällt. Im unteren Bild liegt er in der Streuebene.

Oberer Teil von Fig. 5.j:

Wie in Fig. 5.i erläutert, präpariert man für $\Theta_E=0^\circ$ einen $1p\ \sigma$ -Zustand, für $\Theta_E=90^\circ$ einen $1p\ \pi^+$ -Zustand. Aus der Diskussion der differentiellen Streuquerschnitte (Kap. 5.2.2) ist bekannt, daß die Stoßabregung $Na^*(3^2P) \rightarrow Na(3^2S)$ im Quasimolekül Na_2^+ ausschließlich über die $1\Pi_u - 1\Sigma_u$ Kreuzung läuft, die nur auf der $1\Pi_u$ Potentialkurve erreicht werden kann. Da eine asymptotische $1p\ \pi^+$ -Präparation das größte Streusignal hervorruft, wird daraus geschlossen, daß der asymptotische $1p\ \pi^+$ Zustand in einen molekularen Π -Zustand übergeht. Analog ist eine $1p\ \sigma$ -Präparation mit einem molekularen Σ -Zustand korreliert.

In diesem Energiebereich gilt das molekulare Bild also schon für große Kernabstände. Da im Experiment asymptotisch kein reines Π -Orbital angeregt wird, sondern ein inkohärentes Gemisch von π^+ , π^- und σ im Verhältnis 2.5:1:1 ist auch verständlich, daß im Fall $\Theta_E=0^\circ$ die Streuintensität nicht auf Null absinkt, sondern zum weitaus größten Teil von dem verbleibenden π^+ -Anteil herrührt. Der andere Teil rührt von einem $\Sigma - \Pi$ Übergang der angeregten Potentiale her, wie an späterer Stelle genauer diskutiert wird.

Unterer Teil von Fig.5.j:

Im dieser Polarisationsabhängigkeit liegt der anregende Laserstrahl in der Streuebene. In diesem Fall bedeutet $\Theta_E=0^\circ$ eine überwiegende $|p \sigma \rangle$ -Präparation und $\Theta_E=90^\circ$ eine $|p \pi^- \rangle$ -Anregung. Aus rein geometrischen Gründen folgt, daß für $\Theta_E=0^\circ$ die Streuintensität für Anregung in-plane und out-of-plane dieselbe sein muß, was innerhalb der Fehlergrenzen durch die Messung bestätigt wird (Man beachte die unterschiedliche Skalierung der beiden Ordinaten)

Im Gegensatz zum oberen Fall ist für $\Theta_E=90^\circ$ ein kleines, aber dennoch ausgeprägtes Minimum zu erkennen.

Aus den Intensitätsverhältnissen können nun die relativen Anregungswahrscheinlichkeiten bestimmt werden zu:

$$I(\pi^+) = 0.8 \pm 0.05$$

$$I(\sigma) = 0.12 \pm 0.05$$

$$I(\pi^-) = 0.08 \pm 0.05$$

(siehe auch Kap. Dichtematrix)

Das Ergebnis ist insofern bemerkenswert, als der π^+ und π^- Zustand mit derselben Potentialkurve korrelieren und es von daher keinen Grund für die geringe Wahrscheinlichkeit des π^- Übergangs gibt. Daß die Präparation des $|p \pi^- \rangle$ -Zustandes zu keinem Übergang führt, liegt in dem Erhalt der Reflexionssymmetrie bezüglich der Streuebene begründet.

Die Invarianz des Hamiltonoperators gegenüber der Spiegelung der Koordinaten am Ursprung bedingt, daß die Reflexionssymmetrie der aus Na-Atom und Na^+ -Ion kombinierten Wellenfunktion bezüglich der Streuebene eine Erhaltungsgröße ist. Dabei sind der Drehimpuls und der Spin zu berücksichtigen.

Das heißt für den Fall des angeregten Na_2^+ :

Es können nur die asymptotischen Zustände $\text{Na}(3^2P)$ mit positiver Reflexionssymmetrie zum superelastischen Übergang führen, da der Zustand des Ions unverändert bleibt und der

Grundzustand 3^2S des Natriumatoms positive Reflexions-symmetrie bezüglich der Streuebene besitzt.

Normalerweise wird der Erhalt der Reflexionssymmetrie bei vielen Experimenten vorausgesetzt. Hier ist eine direkte experimentelle Verifikation gegeben.

Zu der obigen Diskussion muß ergänzend bemerkt werden, daß sie nur unter der Prämisse der Entkopplung von Bahndrehimpuls und Spin gelten, also die Gültigkeit der Percival-Seaton-Hypothese vorausgesetzt werden muß. Für L-S Kopplung gilt, daß die Reflexionsymmetrie bezüglich der Gesamtwellenfunktion erhalten werden muß. Der Spin muß also mit berücksichtigt werden.

Der gemessene Wert $I(\pi^-) = (0.08 \pm 0.05)$ mag nun ein Hinweis auf Spin-Flip Prozesse sein, die hier bei den vorliegende Stoßzeiten nicht ganz auszuschließen sind.

Eine vollständige Entkopplung von Bahndrehimpuls und Spin kann bei den Stoßzeiten nicht mehr unbedingt angenommen werden.

Dieser Gesichtspunkt wird in der Dichtematrixauswertung noch einmal erörtert.

5.3.3 Der Alignmentwinkel γ und der Einkoppelradius R_L

Bei einer genaueren Analyse der linearen Polarisationsabhängigkeiten Fig. 5.i stellt man fest, daß das Maximum der Streuintensität um einen Winkel Θ_{shift} gegenüber der maximalen $1p \pi^+$ -Präparation bei $\Theta_E=90^\circ$ verschoben ist. Definiert man den Alignmentwinkel γ in der üblichen Weise als den Winkel zwischen der z^{col} -Achse und der Stellung des E-Vektor für das maximale Streusignal, so findet man aus der Verschiebung Θ_{shift} unter Berücksichtigung der Streugeometrie für die Energie $E_{\text{cm}}=47.5$ eV einen Alignmentwinkel

$$\gamma = 82^\circ \begin{matrix} +3 \\ -5 \end{matrix}$$

Diese Abweichung von $\Theta_E=90^\circ$ ist ein Maß für den Bereich innerhalb dem der Übergang vom atomaren (raumfesten) in das molekulare Beschreibungssystem vor sich geht. Anders ausgedrückt berechnet man aus dem Alignmentwinkel γ einen Einkoppelradius R_L , ab dem die Projektion des Bahndrehimpulses des Elektrons auf die Kernverbindungsachse eine gute Quantenzahl ist. Diese Situation ist schematisch in Fig. 5.k dargestellt.

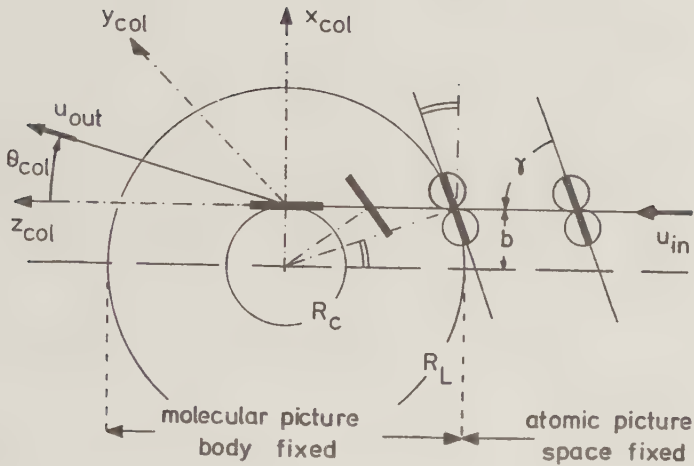


Fig.5.k Einfaches Modell für den Übergang vom raumfesten ins molekulare System

In diesem stark vereinfachten Modell ist dargestellt, wie die atomare p-Keule des Na-Atoms unter dem Alignmentwinkel γ gegenüber z^{col} gedreht sein muß, um einen optimalen molekularen Π -Zustand bezüglich der Kernverbindungsachse zu ergeben.

Wie nun aus der Diskussion der differentiellen Streuquerschnitte bekannt ist (Kap.5.1) führt nur ein sehr kleiner Stoßparameterbereich zum Übergang $1\Pi_u \rightarrow 1\Sigma_u$ im Na_2^+ . Dieser Stoßparameter ergab sich zu $b \sim R_C$, genauer $b = 4.2 - 4.5$ a.u. Mit Hilfe dieses Stoßparameters und dem Alignmentwinkel erhält man den Einkoppelradius R_L nach Fig. 5.k zu:

$$5.5 \quad R_L \approx \frac{b}{\cos \gamma}$$

Es ergibt sich folglich :

$$R_L \sim 35 \text{ a.u.} \quad (22 < R_L < 48 \text{ a.u.})$$

Dieses Modellbild ist natürlich eine starke Vereinfachung der Dynamik des Einkoppelns des Bahndrehimpulses an die Kernverbindungsachse. Der Übergang vom atomaren in das rotierende molekulare System geht in Wirklichkeit natürlich nicht dermaßen unstetig vor sich, sondern es wird einen stetigen Übergangsbereich ("merging region") geben. Dies geht aus den dynamischen Rechnungen hervor, bei denen man die gekoppelten Differentialgleichungen löst, die in Kap.3. diskutiert wurden.

Der Alignmentwinkel ist kaum vom Streuwinkel abhängig wie man in Fig.5.1 erkennt.

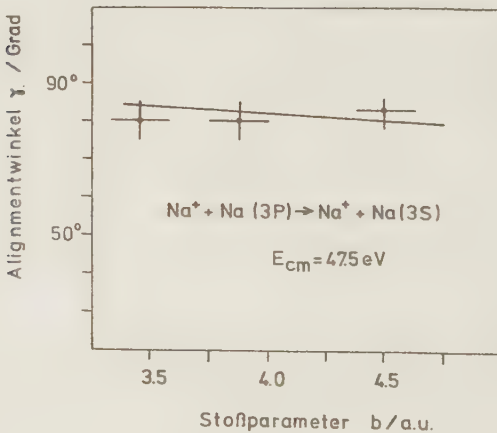


Fig.5.1 Alignmentwinkel als Funktion des Streuwinkels

In Fig.5.1 ist für eine feste Energie $E_{cm}=47.5\text{eV}$ die Abhängigkeit des Alignmentwinkels γ vom Stoßparameter im Bereich $3.0\text{a.u.} \leq b \leq 5.0\text{a.u.}$ dargestellt. Die Übereinstimmung zwischen den gemessenen Werten und der Rechnung (durchgezogene Linie) ist gut. Die Rechnung ergibt eine Gerade, bei der der Alignmentwinkel für grössere Stoßparameter kleiner wird. In dem einfachen Bild des Einkoppelradius bedeutet das, daß für einen grösseren Stoßparameter das Orbital stärker gedreht werden muß um an dem Einkoppelkreis einen maximalen molekularen Π zu ergeben. Die Interpretation des gerechneten Alignmentwinkels in dem einfachen Einkoppelbild gilt nur wenn $b \ll R_L$ ist. Diese Bedingung ist für den $3P \rightarrow 3S$ Übergang erfüllt.

Es wurde das Polarisationsverhalten energieabhängig zwischen $E_{cm} = 20 \text{ eV}$ bis 50 eV vermessen, und das Verhalten von für einen festen reduzierten Streuwinkel $\tau = 180 \text{ eVGrad}$ bestimmt. Die Ergebnisse sind in Fig. 5.m dargestellt.

Man erkennt eine schwache Energieabhängigkeit des Alignmentwinkels γ . Für größere Energien wird der Alignmentwinkel größer, daß heißt der Einkoppelradius R_L wird kleiner. Dieses Verhalten ist zu erwarten, da für einen festen Stoßparameter b_C und einer größeren Geschwindigkeit v des Ions die Stoßzeit zwischen Atom und Ion kleiner wird. Damit erfolgt die Bildung des Quasimoleküls bei einem kleineren Einkoppelradius R_L .

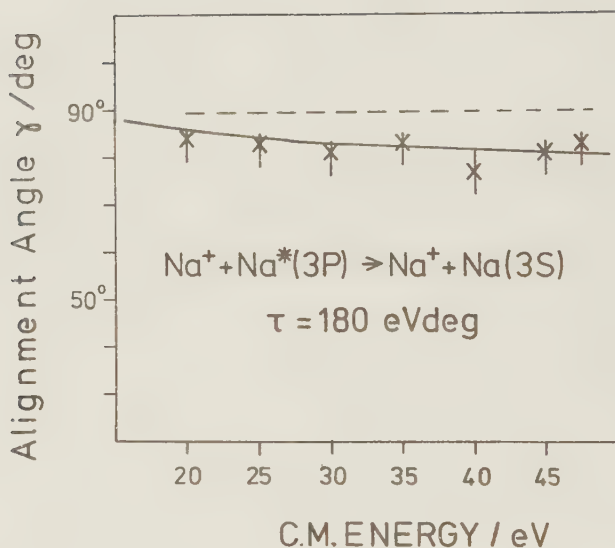


Fig 5.m Abhängigkeit des Alignmentwinkels γ von der Energie E_{cm}

Die Lösung des gekoppelten Differentialgleichungssystems für drei Zustände in dem gemessenen Energiebereich $15 \leq E_{\text{cm}} \leq 50 \text{ eV}$ mit den Meyer-Spies Potentials /BHMMSS84/ ergibt für den optimalen Stoßparameter $b=4.4 \text{ a.u.}$ die in Fig.5.m durchgezogene Linie. Sie stimmt mit den gemessenen Werten innerhalb der Fehlergrenzen sehr gut überein.

Aus dem Alignmentwinkel γ kann man, wie aus der obigen Diskussion hervorgeht, auf die Lage des Übergangsbereichs vom atomaren in das molekulare Bezugssystem schließen. Außerdem kann man aus dem Alignmentwinkel eindeutig bestimmen welches Vorzeichen der im Stoß übertragene Drehimpuls hat, d.h. ob das Na^* "links" oder "rechts" am Ion vorbeifliegt.

Bezüglich des Koordinatensystems in Fig.5.n beobachtet man einen Alignmentwinkel γ für das Streumaximum bei dem schematisch eingetragenen Streuwinkel θ_{col} . Der Polarisationsdreher dreht den E-Vektor des anregenden Lichts in der Streuebene im mathematisch negativen Sinn, d.h. θ_E ist rechtsdrehend. Das Maximum des Streusignals liegt vor 90° . Das entspricht einem Alignmentwinkel von $\gamma = 82^\circ$. Das gestreute Teilchen muß bei dem vorgegebenen Detektorwinkel θ_{col} deshalb die eingezeichnete obere Trajektorie durchlaufen. Es wird vom Target weggestreut und damit ist das Wechselwirkungspotential effektiv repulsiv. Für die untere Trajektorie müßte der Alignmentwinkel $\gamma > 90^\circ$ sein. Das Teilchen würde vom Target weggestreut und das Wechselwirkungspotential wäre attraktiv.

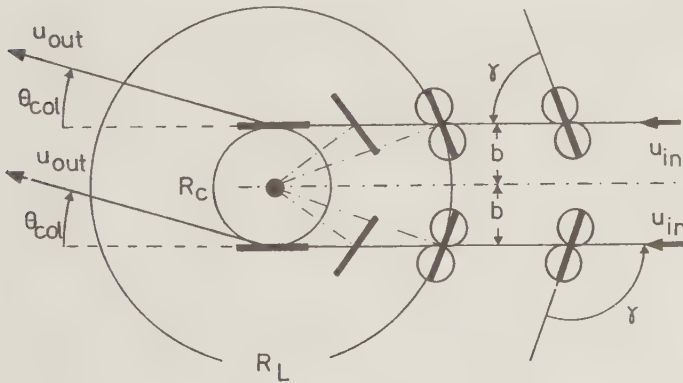


Fig.5.n Trajektorien für repulsives und attraktives Potential

5.3.4 Die zirkulare Polarisisation und der Stokes-Parameter P_3

Das Natriumatom wird durch linkszirkular (LHC) und rechtszirkular (RHC) polarisiertes Licht angeregt, das senkrecht zur Streuebene einfällt. Gemessen wird der Stokes-Parameter P_3 als Funktion der Energie und des Streuwinkels

$$5.6 \quad P_3 = \frac{I_{RHC} - I_{LHC}}{I_{RHC} + I_{LHC}}$$

im Energiebereich von $E_{cm}=15$ eV bis $E_{cm}=50$ eV. $I_{RHC,LHC}$ entspricht hier der gemessenen superelastischen Streurate für Anregung mit RHC- bzw. LHC-Licht.

Die gemessenen Werte für P_3 sind in Fig.5.0 als Funktion der Energie für den festen reduzierten Streuwinkel $\tau = 180^\circ$ dargestellt:

Man stellt fest, daß die zirkulare Asymmetrie erstaunlich groß ist und Werte bis zu $P_3 = 0.25$ erreicht. Mit fallender Energie nimmt P_3 leicht ab. Zur Veranschaulichung bedeutet ein P_3 von 0.25 ein Verhältnis $I_{RHC} : I_{LHC}$ von ungefähr 2:1. Man kann es auch folgendermaßen ausdrücken: Das Streusignal $I(\theta_{col})$ für einen positiven Streuwinkel ist doppelt so groß wie die Streurrate $I(-\theta_{col})$ für einen negativen Streuwinkel bei fester zirkularer Polarisationsrichtung.

Für zirkular polarisiertes Licht das in der Streuebene einfällt, darf keine Asymmetrie zwischen RHC- und LHC-Licht auftreten, da in der Streuebene kein Drehimpuls übertragen werden kann. Als Kontrolle wurde diese Messung ebenfalls durchgeführt und es wurde wie erwartet kein Unterschied in der Streuintensität für links- und rechtszirkular polarisiertes Licht festgestellt.

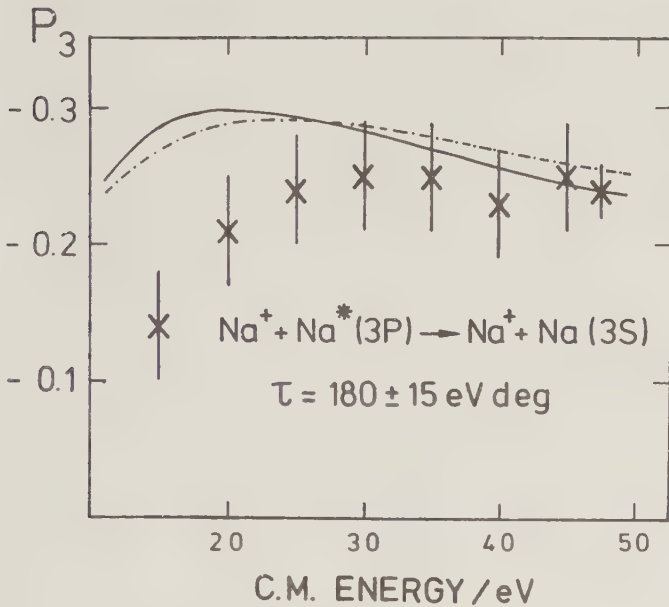


Fig.5.o P_3 als Funktion der Energie E_{cm} für den reduzierten Streuwinkel $\tau = 180 \text{ eV grad}$

Im Folgenden sei eine anschauliche Erklärung gegeben:

Wie aus der klassischen Optik bekannt ist, kann man zirkular polarisiertes Licht aus zwei linear polarisierten E-Vektoren zusammensetzen, die aufeinander senkrecht stehen und eine Phasendifferenz von $\pm \pi/2$ haben, je nachdem ob RHC oder LHC-Licht präpariert werden soll.

In unserem molekularen Bild präpariert man bei der Out-of-Plane Anregung mit zirkular polarisiertem Licht asymptotisch eine kohärente Mischung von $|3p\pi^+\rangle$ und $|3p\sigma\rangle$ Zuständen mit einer Phasendifferenz von $\pm \pi/2$.

Der Unterschied im Streusignal für RHC und LHC Anregung entsteht aus den verschiedenen Entwicklungen der Wellenfunktion des System auf den angeregten Π und Σ Potentialkurven. Da der Abregungsprozeß nur über die $1^2\Pi_u^+ - 1^2\Sigma_u^+$ Kreuzung für einen festen Stoßparameter von $b \sim 4.4$ a.u. ablaufen kann, ist es möglich dieses Phänomen mittels dieses Kanals zu beobachten.

Die durchgezogene Linie in Fig.5.0' zeigt das gerechnete Asymmetrieverhältnis als Funktion der Energie für eine gekrümmte Trajektorie, bei der das Teilchen auf dem Grundzustand einläuft und auf dem angeregten $1^2\Pi_u$ Potential ausläuft. Die Werte von P_3 wurden für den optimalen Stoßparameter $b \sim 4.4$ a.u. gerechnet. Man erkennt für größere Energien eine Übereinstimmung der gerechneten mit den gemessenen Werten, während ab $E_{cm}=30$ eV die gerechneten Werte deutlich über den Messungen liegen.

Die strichpunktierte Linie zeigt eine Rechnung für eine gerade Trajektorie. Sie zeigt ein ähnliches Verhalten wie die gekrümmte Trajektorie. Diese Differenz zwischen Theorie und Experiment bei den kleinen Energien deuten auf Spin-Flip Prozesse hin. Man muß infolgedessen die gekoppelten Gleichungen unter Berücksichtigung des Spins lösen.

Es wurde für die Energie $E_{cm}=47.5$ eV die Abhängigkeit des Asymmetrieverhältnisses P_3 als Funktion des Streuwinkels aufgenommen. Man erkennt, daß sich P_3 über den Winkelbereich innerhalb der Fehlergrenzen nicht ändert.

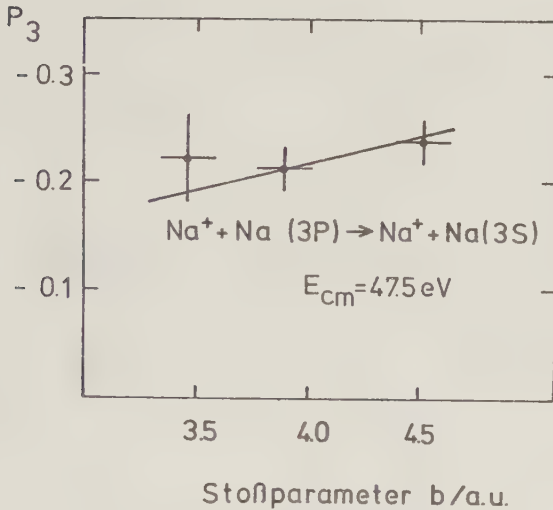


Fig.5.p P_3 als Funktion des Streuwinkels, $E_{\text{cm}} = 47.5\text{eV}$

Berechnet man mit der semiklassischen Näherung P_3 als Funktion des Stoßparameters bei der Energie $E_{\text{cm}} = 47.5\text{eV}$ so erhält man die in Fig.5.p dargestellte Gerade. Es stimmen die gemessenen Werte für P_3 innerhalb der Fehlergrenzen mit den Rechnungen überein.

Es wurde eine gekrümmte inelastische Trajektorie zur Berechnung von P_3 benutzt.

Unter Einbeziehung von Näherungslösungen der 'gekoppelten Differentialgleichungen' für die angeregten Potentialkurven (siehe Kap. Streutheorie) ergibt sich ein realistisches Modell für das angeregte Na_2^+ -Molekül wie es in Fig.5.q dargestellt ist.

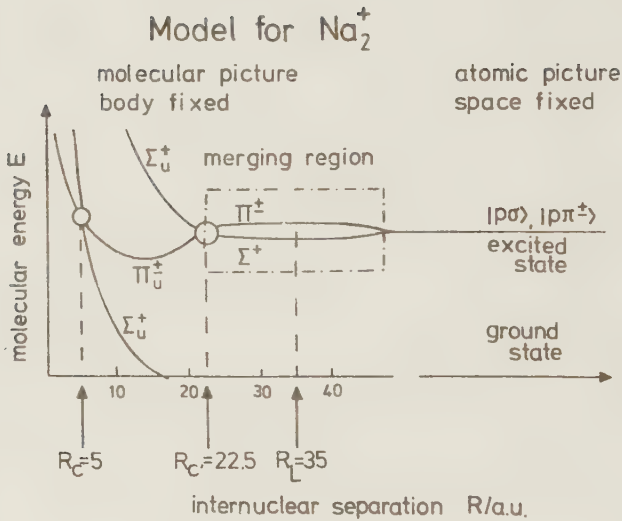
Fig. 5.q Na_2^+ -Modell

Bild 5.q zeigt ein qualitatives Bild der für diesen Prozeß wichtigen Na_2^+ -Potentialkurven. Eingezeichnet sind hier die wichtigsten Bereiche, die für die einzelnen gemessenen Effekte relevant sind.

Diskutieren wir das Bild in Richtung größerer Kernabstände. Bei $R_c = 4.9$ a.u. kreuzt der molekulare $1^2\Sigma_u$ Grundzustand mit dem angeregten $1^2\Pi_u^+$ -Zustand. Dieser Bereich ist über die Rotationskopplung für den superelastischen Übergang verantwortlich.

Bei $R_c = 22.5$ a.u. kreuzen sich die angeregten $1\Pi_u$ und $2\Sigma_u$ -Potentiale.

Zwischen ca. $15a.u$ und größeren Kernabständen ($R < 50a.u$) befindet sich ein Bereich, in dem der Übergang vom raumfesten (atomaren) in das molekulare (rotierende) Koordinatensystem stattfindet, in diesem Bereich wird das Molekül gebildet. Dies ist selbstverständlich ein stetiger Vorgang und das Einkoppeln des elektronischen Drehimpulses an die Kernverbindungsachse findet nicht bei einem festen Radius R_L statt sondern stetig im "merging" Bereich. R_L gibt als Meßgröße einen mittleren Einkoppelradius an.

In diesem "merging" Bereich wird die Asymmetrie der zirkularen Polarisation erzeugt. Man kann die Größe des Bereichs ermitteln, indem man die Abhängigkeit der Orientierung P_3 von dem Einschalten der Kopplung $\langle l^2 \Pi_u | L_y | l^2 \Sigma_u \rangle = A_{23}$ bestimmt. Man erhält so den Beitrag von Teilen des Potentials zur zirkularen Asymmetrie. Schaltet man die Kopplung erst ab $R=50a.u.$ ein, dh. $R < 50a.u : A_{23}=0$, $R \geq 50 : A_{23}=1$, so ergibt sich ein $P_3 < 0.01$. Verschieben des Beginns der Kopplung A_{23} zu kleineren Radien bedingt ein Anwachsen von P_3 . Mit dem in Tab.3.5 aufgeführten Koppelement A_{23} wurden die Rechnungen durchgeführt und man sieht, daß sich der "merging" Bereich von $15a.u.$ bis $50 a.u.$ erstreckt.

Weiterhin finden für $R > R_L$ im molekularen Bild stetige Übergänge zwischen den angeregten Π und Σ Zuständen statt, da für größere Kernabstände die angeregte Keule der elektronischen Ladungsverteilung noch als raumfest angenommen werden kann und sich deshalb die Projektion des Drehimpulses auf die Kernverbindungsachse als neue Quantisierungsachse ständig ändert.

5.3.5 Die Dichtematrix des 3P - Zustandes

Wie bereits in Kap.4. ausführlich beschrieben wurde, kann aus den linearen Polarisationsmessungen in-plane und out-of-plane sowie den zirkularen Polarisationsabhängigkeiten out-of-plane die Dichtematrix ρ des angeregten 3P - Zustandes bestimmt werden.

Diese Matrix beschreibt die durch Stoß angeregte elektronische Ladungsverteilung des Na-Atoms im 3P-Zustand. Die Matrix wird in diesem Experiment über den zeitumgekehrten Prozeß der Stoßabregung gemessen. Sie enthält neben der Beschreibung der Besetzungsamplituden für die asymptotischen σ und π Zustände Information über die Kohärenz des Anregungsprozesses und die Erhaltung der Reflexionssymmetrie. Die Dichtematrix ist in einer $|LM_L\rangle$ -Basis dargestellt.

Da für die Dichtematrix gilt :

$$I \sim \text{Tr}(\rho \cdot \sigma)$$

wobei σ die Dichtematrix der optischen Anregung ist, benötigt man zur Berechnung der stoßinduzierten Dichtematrix die optischen Parameter der Anregung. Der optische Alignment-Parameter a_0^1 kann aus der Fluoreszenz bestimmt werden, die gleichzeitig mit der linearen Polarisationsabhängigkeiten aufgenommen wurde. Der Alignment- und Orientierungsparameter a_0^C und o_0^C für zirkuläre Anregung wurden aus der Arbeit von /FiH82/ übernommen, wobei folgende Werte benutzt wurden:

$$a_0^C = 0.8$$

$$o_0^C = 0.9$$

was einer Atomstrahldichte zwischen 10^{10} und 10^{11} Teilchen pro cm^3 entspricht.

Die Bestimmung der vier experimentellen Dichtematrixelemente erfolgt nach dem in Kap.4.3 vorgestellten Formalismus. Die physikalische Bedeutung der Elemente wurde dort ebenfalls erläutert.

Die theoretischen Dichtematrixelemente erhält man aus den Lösungen der gekoppelten Differentialgleichungen (Kap.3 und Anhang) auf folgende Weise:

Die semiklassischen Rechnungen beinhalten nur Übergänge zwischen Σ und Π Zuständen mit positiver Reflexionssymmetrie bezüglich der Streuebene. Der $|M_L=0\rangle$ Zustand, der negative Reflexionssymmetrie besitzt, kann nicht stoßangeregt werden und damit ist $\rho_{00}=0$. Aus $\text{tr}(\rho) = 1$ folgt für unser einfaches Modell:

$$5.8 \quad \rho_{11} + \rho_{-1-1} = 1$$

und die diagonalen Dichtematrixelemente können aus dem theoretisch ermittelten P_3 nach

$$5.9 \quad P_3 = \rho_{-1-1} - \rho_{11}$$

berechnet werden

Die Stoßanregung der Zustände gleicher Reflexionssymmetrie $|M_L=1\rangle$ und $|M_L=-1\rangle$ ist in diesem einfachen theoretischen Modell, daß keine Spineffekte beinhaltet, per Definition kohärent. Für einen vollständig kohärenten Prozess gilt:

$$5.10 \quad \text{tr}(\rho^2) = 1$$

Damit ergibt sich für den Betrag des theoretischen Nicht-diagonalelements:

$$5.11 \quad |\rho_{1-1}| = (\rho_{11} \rho_{-1-1})^{1/2}.$$

Bei den hier betrachteten Stoßenergien ist das Auftreten von Spineffekten nicht auszuschließen. Es ist daher interessant, die Kohärenz der Zustände mit positiver Reflexionssymmetrie zu untersuchen. Dazu definiert man eine Submatrix ρ^+ , die aus den gemessenen Dichtematrixelementen ρ_{11} und ρ_{-1-1} gebildet wird.

5.12

$$\rho^+ = \begin{pmatrix} \rho_{11} & \rho_{1-1} \\ \rho_{1-1} & \rho_{-1-1} \end{pmatrix}$$

Aus der Submatrix erhält man eine Subkohärenz /HeH82/

$$5.11 \quad K^+ = \frac{\text{tr}(\rho^+)^2}{(\text{tr} \rho^+)^2} = \frac{(\rho_{11}^2 + 2\rho_{1-1}^2 + \rho_{-1-1}^2)}{(\rho_{11} + \rho_{-1-1})^2}$$

Ist $K^+ = 1$ so hat man eine kohärente Population der Zustände $|LM=1\rangle$ und $|LM=-1\rangle$, für $K^+ = 1/2$ eine vollständig inkohärente Besetzung.

In unserer einfachen Theorie ist natürlich $K^+ = 1$.

Fig.5.s zeigt die gemessenen Dichtematrixelemente und den Kohärenzparameter K^+ als Funktion des Streuwinkels θ_{cm} bei einer Streuenergie von $E_{\text{cm}} = 47.5$ eV.

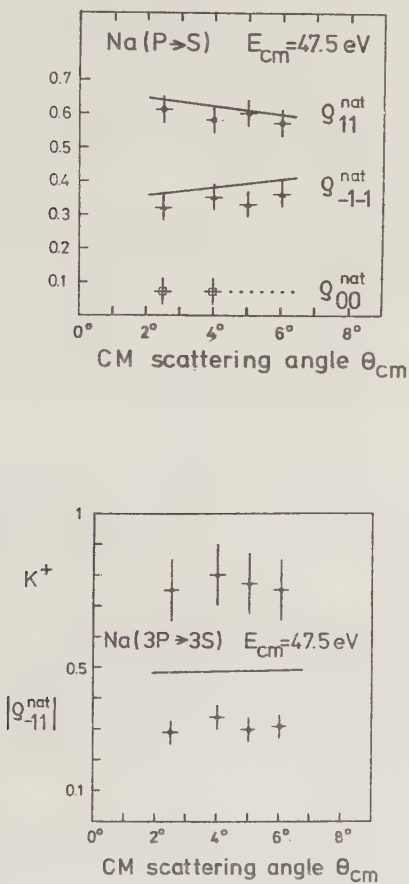


Fig.5.s Dichtematrixelemente als Funktion des Streuwinkels für $E_{\text{cm}}=47.5$ eV. Die durchgezogenen Linien entsprechen der semiklassischen Theorie mit $\rho_{00}=0$ und $K^+=0$.

Man erkennt, daß sich die Dichtematrixelemente über den Streuwinkel innerhalb der Fehlergrenzen nicht ändern.

Anschaulich kann man das folgendermaßen erklären:

Wie bei der Diskussion des Alignmentwinkels und der Orientierung P_3 zu sehen war, wird die Population der magnetischen Unterniveaus im zeitumgekehrten Streuprozess allein durch die Dynamik des Streuprozesses im 'merging' Bereich bestimmt. Dieser ist räumlich deutlich von der Kurvenkreuzung bei $R_C = 4.9$ a.u. getrennt über die die Stoßanregung des 3P-Zustandes laufen muß. Durch diese räumliche Trennung ist ein Einfluß des Streuwinkels auf die Dichtematrixelemente bei dem kleinen Stoßparameterbereich nicht zu erwarten. Das zeigen auch die Rechnungen für P_3 und γ . Beide sind innerhalb dieses begrenzten Stoßparameterbereichs kaum vom Stoßparameter abhängig.

Die Situation kann sich bei hohen Energien drastisch ändern, da es dann einen räumlichen Überlapp des Kreuzungsbereichs mit dem Einkoppelbereich gibt.

Das Matixelement ρ_{00} entspricht einer Ladungsverteilung mit negativer Reflexionsymmetrie bezüglich der Streuebene. Da ρ_{00} fast Null ist, heißt das, daß die Reflexionsymmetrie fast vollständig erhalten bleibt.

Unter Einbeziehung des Spins des Elektrons in die Gesamtwellenfunktion ist die Besetzung des Zustands $|0\rangle$ möglich, da nun Spin-Flip Prozesse erlaubt sind und die Reflexionsymmetrie bezüglich der Streuebene im $|J\rangle$ Bild auch bei Spin-Flip Prozessen erhalten bleibt. Die Dichtematrix müßte dann konsequenterweise in einer $|JM_J\rangle$ Basis beschrieben werden.

Um nun zu zeigen, ab wann die Voraussetzung der L-S Entkopplung nicht mehr gültig ist, müßte mit kleineren Primärenergien experimentiert werden (1 eV bis 10 eV). Diese Experimente sind im Prinzip möglich, scheitern aber im Moment an der geringen Intensität des Streusignals und den daraus resultierenden langen Meßzeiten.

In Fig.5.t ist die Energieabhängigkeit der Dichtematrixelemente bei festem reduzierten Streuwinkel von $\tau = 180$ eVGrad dargestellt.

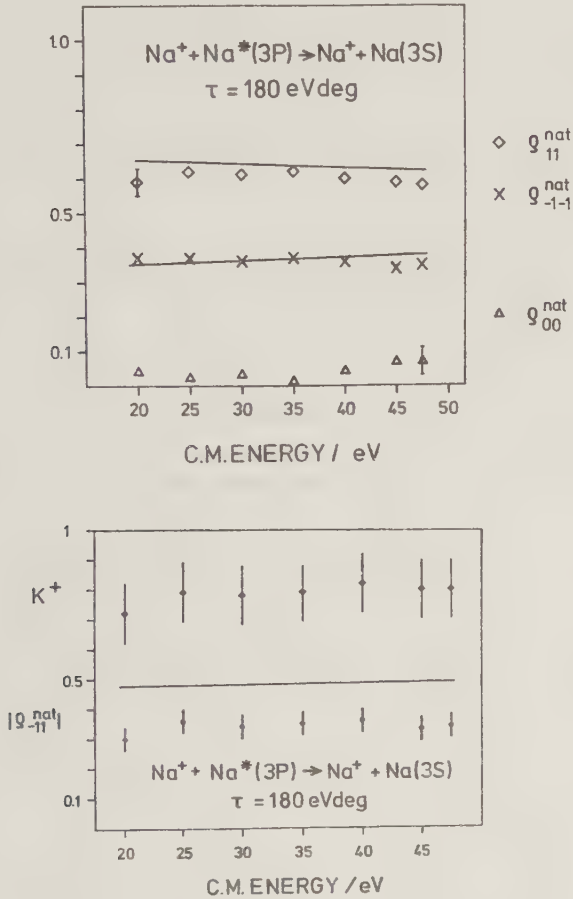


Fig.5.t Energieabhängigkeit der Dichtematrixelemente für einen reduzierten Streuwinkel $\tau = 180 \text{ eVgrad}$. Durchgezogene Linien entsprechen der semiklassischen Theorie.

Auch hier sind die Dichtematrixelemente innerhalb der Fehlergrenzen nicht von der Energie abhängig. Die Erklärung dieses Verhaltens ist letzten Endes dieselbe wie bei der Abhängigkeit der Matrixelement vom Streuwinkel. Aus den Messungen des Alignmentwinkels und der Konstanz des reduzierten Streuwinkels über den hier betrachteten Energiebereich folgt wiederum, daß der Kreuzungsbereich und der Einkoppelbereich räumlich disjunkt sind. Die Radialenergie ist konstant. Aus der Konstanz des Alignmentwinkels ist in diesem Energiebereich keine Energieabhängigkeit der Dichtematrixelemente zu erwarten.

Die Übereinstimmung der Meßwerte mit den theoretischen diagonalen Dichtematrixelementen ist gut und sie stimmen innerhalb der Fehlergrenzen überein. Anders ist die Situation bei dem Kohärenzparameter K^+ und $|\rho_{1-1}|$. Dort ist eine deutliche Diskrepanz zwischen Theorie und Experiment festzustellen. Der gemessene Wert von K^+ liegt bei 0.8 und unterscheidet sich eindeutig vom theoretischen Wert 1.0. Das würde bedeuten, daß auch die Population der Zustände mit positiver Reflexionssymmetrie nicht vollständig kohärent vor sich geht. Nun bleibt allerdings der elektronische Spin erhalten und das gestreute Ion bleibt während der gesamten Streuung im isotropen 1S_0 Grundzustand, so daß nicht ersichtlich ist, welche inkohärenten Prozesse zu diesem Kohärenzparameter K^+ führen konnten. Dies zeigt uns deutlich die Grenzen der einfachen Theorie bei nur drei molekulare Zustände über Rotationskopplung miteinander verknüpft werden. Es ist offensichtlich notwendig Spineffekte zu berücksichtigen und die Rechnungen unter Einschluß der Feinstruktur durchzuführen.

Die Dichtematrixdarstellung ist also in der $|LM_L\rangle$ -Basis nicht mehr streng gültig ist. Im Prinzip müßte der Auswertungsformalismus, der in Kap.III vorgestellt wurde, in einem Schema mit Gesamtdrehimpuls J und einer $|(LS)JM_J\rangle$ -Basis dargestellt werden.

Mit Hilfe der Gleichungen 5.13

$$5.13 \quad \rho_{\pi^-\pi^-} = \rho_{00}$$

$$\rho_{\sigma\sigma} = 1/2 (\rho_{-1-1-2} + \rho_{-11} + \rho_{11})$$

$$\rho_{\pi^+\pi^+} = -1/2 (\rho_{-1-1+2} + \rho_{-11} + \rho_{11})$$

kann man die Dichtematrixelemente von der $|LM_L\rangle$ -Basis auf eine $|p\sigma\rangle$, $|p\pi^+\rangle$ und $|p\pi^-\rangle$ -Basis umtransformieren.

Aus den gemittelten Werten der Messungen für ρ_{11} , ρ_{-1-1} , und $|\rho_{-11}|$ ergeben sich folgende Werte:

$$\rho_{\sigma\sigma} = 0.14$$

$$\rho_{\pi^+\pi^+} = 0.79$$

dabei beschreiben $\rho_{\sigma\sigma}$ und $\rho_{\pi^+\pi^+}$ die relativen Übergangswahrscheinlichkeiten zum Abregen des asymptotisch präparierten σ bzw. π^+ -Zustandes.

Der Nichtdiagonalterm

$$\rho_{\sigma\pi^-} = 0.09 - i0.12$$

beschreibt die Kohärenz zwischen σ und π^- .

6. ZUSAMMENFASSUNG

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der Untersuchung des Stoßprozesses $\text{Na}^*(3^2\text{P}_{3/2}) + \text{Na}^+ \rightarrow \text{Na}(3^2\text{S}_{1/2}) + \text{Na}^+$ in einem Energiebereich zwischen $E_{\text{cm}} = 15$ bis 50 eV. Der Vorgang kann durch eine kurzfristigen Bildung eines Quasimoleküls Na_2^+ während des Stoßes beschrieben werden.

Die Messungen wurden an einem konventionellen Ionenstoßspektrometer durchgeführt, wie es zur Bestimmung von differentiellen Streuquerschnitten benutzt wird. Der $\text{Na}(3\text{P})$ -Zustand wird durch optisches Pumpen des Natriumatomstrahls mit Hilfe eines durchstimmbaren Ringdyelasers im Streuzentrum angeregt, wobei das Streuzentrum durch die rechtwinklig sich kreuzenden Atom- und Ionenstrahlen definiert ist. Der Laserstrahl kann senkrecht oder parallel zur Streuebene das Streuzentrum passieren. Linear polarisiertes Licht bewirkt ein optisch induziertes Alignment, also eine räumliche Ausrichtung der Ladungsverteilung, zirkular polarisiertes Licht eine optische Orientierung, also eine räumliche Ausrichtung des Drehimpulses des Valenzelektrons.

Es sind zwei verschiedene Arten von Messungen möglich, die sich in ihren Aussagen ergänzen und die Dynamik des Streuprozesses in zwei getrennten Abschnitten des angeregten adiabatischen Na_2^+ -Potentials ergeben.

Mit der Messung des differentiellen Streuquerschnittes wird die Lage der nichtadiabatischen Kurvenkreuzung $1\Pi_u - 1\Sigma_u$ bestimmt. Man sieht, daß der Übergang über eine Rotationskopplung abläuft. Zusammen mit den theoretisch berechneten Wirkungsquerschnitten /AK84/ zeigen die Meßergebnisse, daß einzig diese Kreuzung zu einem nichtadiabatischen Übergang in den Grundzustand führt. Der dazu beitragende Stoßparameterbereich ist klein und liegt ungefähr bei $b_c \sim 4.2 - 4.5$ a.u. Mit diesen Messungen wird also die Dynamik des Stoßprozesses im Bereich der Kurvenkreuzung $1\Pi_u - 1\Sigma_u$ untersucht.

Messungen von Polarisationsabhängigkeiten ermöglichen, sofern die Streudynamik theoretisch richtig beschrieben wird, genaue Aussagen über die Güte der Potentiale und der Kopplungen.

Durch die Wahl der Streugeometrie werden durch Variation des E-Vektors bei Anregung mit linear polarisiertem Licht asymptotisch die Orbitale $|p\pi^+\rangle$, $|p\pi^-\rangle$ und $|p\sigma\rangle$, bzw. Mischungen derselben präpariert. Es stellt sich experimentell heraus, daß ein $|p\pi^+\rangle$ -Orbital in den entsprechenden Π -Zustand des Moleküls übergeht, ebenso ein $|p\sigma\rangle$ in einen Σ -Zustand

Die Reflexionssymmetrie bezüglich der Streuebene bleibt im IL -Bild unter Vernachlässigung von Spin-Flip Prozessen erhalten, da eine Präparation eines $|p\pi^-\rangle$ -Zustandes nur zu einer geringen superelastischen Streuintensität führt.

Die genauere Betrachtung der Meßergebnisse ergibt eine optimale molekulare Π -Präparation für eine gegenüber dem $|p\pi^+\rangle$ um den Alignmentwinkel γ gedrehte Ladungskeule. Aus diesem Alignmentwinkel γ erhält man eine Abschätzung des Kernabstandes $R_L \sim 35a.u$ bei dem der Übergang vom atomaren System (raumfest) in das molekulare System (rotierend) stattfindet. Unsere Rechnungen bestätigen dieses grobe Modell. Der Übergang in das molekulare System erfolgt sicher nicht abrupt, sondern es gibt einen stetigen Übergangsbereich innerhalb dem der elektronische Bahndrehimpuls an die Kernverbindungsachse ankoppelt. Der gemessene Wert für R_L ist in diesem Sinn als ein mittlerer Radius zu verstehen. Aus der Größe des Alignmentwinkels γ kann man unter Berücksichtigung der Streugeometrie ermitteln an welcher Seite des Targets das Projektil passiert hat. Zusammen mit dem Streuwinkel ergibt sich für den betrachteten Energiebereich ein repulsives Wechselwirkungspotential.

Benutzt man zirkular polarisiertes Licht zur Anregung, so ergibt sich bei Einschuß des Lasers senkrecht zur Streuebene eine starke Asymetrie für RHC- und LHC-Licht. Dies drückt der Stokes-Parameter P_3 aus, der zu $P_3 \sim 0.25$ bestimmt wird. Im natürlichen Koordinatensystem ist P_3 ein Maß für den übertragenen Drehimpuls.

Es wurde das gekoppelte Gleichungssystem für drei Zustände numerisch gelöst. Aus den komplexen Besetzungsamplituden wurden der Alignmentwinkel, die Orientierung P_3 und die Dichtematrixelemente berechnet. Die Rechnungen zeigen wie erwartet, daß das Einkoppelmodell zu einfach, aber eine anschauliche Näherung ist.

Innerhalb der Fehlergrenzen stimmen der gemessene Alignmentwinkel mit den Rechnungen überein. Für P_3 gilt das nur für Energien oberhalb $E_{cm}=30\text{eV}$. Für kleine Energien weichen die gemessenen Werte von den gerechneten ab. Dies kann durch die größere Wahrscheinlichkeit von Spin-Flip Prozessen hervorgerufen werden. Im Experiment wird dann im wesentlichen $\langle J_Y \rangle$ und nicht $\langle L_Y \rangle$ gemessen. Zur theoretischen Behandlung dieses Problems müßten die gekoppelten Differentialgleichungen des Streuproblems unter Berücksichtigung der Feinstruktur gelöst werden.

Aus den Ergebnissen der linearen und zirkularen Polarisationsmessungen konnte erstmals die vollständige Dichtematrix für die Stoßanregung eines Na-Atoms mit einem Na-Ion aufgestellt werden. Es zeigt sich, daß die Dichtematrixelemente nicht von der Energie und vom Streuwinkel abhängen. Das Element ρ_{00} ist nur wenig von Null verschieden, da der Übergang symmetrieverboten ist. Allerdings deuten sich auch hier die Möglichkeit von Spin-Flip Prozessen an, da ρ_{00} innerhalb der Fehlergrenzen ungleich Null ist. Die theoretischen diagonalen Dichtematrixelemente stimmen mit den gemessenen Werten gut überein. Für den Kohärenzparameter K^+ und das Nichtdiagonalelement $|\rho_{1-1}|$ findet man keine Übereinstimmung zwischen Experiment und Theorie. Es ergeben sich in der hier benutzten L-Darstellung der Dichtematrix Inkohärenzen bei der Anregung von reflexionsymmetrisch erlaubten Übergängen. Dies wird durch mögliche Feinstrukturübergänge im Übergangsbereich vom atomaren zum molekularen Bild erklärt.

Zusammenfassend kann man sagen, daß das Na_2^+ -Molekül ein ausgezeichneter Modellfall zum Studium nichtadiabatischer Übergänge und der Dynamik der Molekülbildung sowohl von der experimentellen Seite als auch von der Theorie her ist.

Anhang:

Das Hamming-Predictor-Corrector-Verfahren,
die Numerische Behandlung des Streuproblems.

Die zentrale Routine des Programms zur numerischen Behandlung des Streuproblems ist das modifizierte Hamming-Predictor-Corrector-Verfahren zur näherungsweisen Lösung der gekoppelten Gleichungen 3.28. Aus den Amplituden werden der Alignmentwinkel und der übertragene Drehimpuls berechnet. Wegen ihrer zentralen Bedeutung wird zuerst dieses Verfahren behandelt und anschließend das Gesamtprogramm erläutert.

Eine ausführliche Darstellung des Verfahrens findet man in Ralston-Wilfs: "Mathematical methods for digital computers" /RaWi60/. Die verwendete Routine wurde uns von Prof. Dr. Kempter/Universität Freiburg und Dr. Schinke/MPI Göttingen zur Verfügung gestellt.

Das Ziel des Hamming-Predictor-Corrector-Verfahrens, im Folgenden kurz MHPC-Verfahren genannt, ist es, eine approximative Lösung eines allgemeinen Systems von gewöhnlichen Differentialgleichungen 1. Ordnung mit gegebenen Anfangsbedingungen zu erhalten. Das MHPC-Verfahren ist eine numerisch stabile Integrationsmethode 4. Ordnung, bei der die rechte Seite des Differentialgleichungssystems nur zweimal pro Iterationsschritt aufgerufen wird. Das Standardverfahren Runge-Kutta benötigt zum Beispiel vier Berechnungen der rechten Seite pro Iterationsschritt. Ein weiterer Vorteil des MHPC ist die Möglichkeit zu jedem Schritt einen lokalen Fehler zu bestimmen. Überschreitet der Fehler eine vorgegebene Größe ϵ , so ist die Prozedur in der Lage die Schrittweite zu verkleinern um eine höhere numerische Genauigkeit zu erzielen. In der benutzten Prozedur kann die Schrittweite selbsttätig bis zu 10-mal halbiert werden. Ist der lokale Fehler kleiner als extern vorgegeben, so kann die Schritt-

weite wieder vergrößert werden, um die Rechenzeit zu verkleinern. Allerdings wird die Schrittweite nicht größer als das extern vorgegebene .

Das MHPC-Verfahren ist nicht selbststartend, man benötigt außer den Anfangsbedingungen $Y(x_0)$ noch die darauf folgenden 3 Punkte. Sie werden durch ein spezielles Runge-Kutta-Verfahren ermittelt.

Es sei nun eine Differentialgleichungssystem

$$A.1 \quad Y' = dY/dx = F(x, Y)$$

mit den Anfangsbedingungen $Y(x_0) = Y_0$ gegeben.

Es wird folgende Vektornotation benutzt:

$$\begin{aligned} Y(x) &= (Y_1(x), Y_2(x), \dots, Y_n(x)) \\ F(x, Y) &= (f_1(x, Y), f_2(x, Y), \dots, f_n(x, Y)) \\ Y_0(x_0) &= (Y_1(x_0), Y_2(x_0), \dots, Y_n(x_0)) \end{aligned}$$

Sind die Ergebnisse für die äquidistanten Punkte x_{j-3} , x_{j-2} , x_{j-1} und x_j bekannt, so ergibt sich das Ergebnis für den Punkt x_{j+1} nach Gl.A.2 (h =Schrittweite):

A.2

Predictor:

$$P_{j+1} = Y_{j-3} + 4h/3 (2Y_j' - Y_{j-1}' + 2Y_{j-2}')$$

Modifizier:

$$\begin{aligned} M_{j+1} &= P_{j+1} - 112/121 (P_j - C_j) \\ M_{j+1}' &= F(x_{j+1}, M_{j+1}) \end{aligned}$$

Corrector:

$$C_{j+1} = 1/8 (9Y_j - Y_{j-2} + 3h(M_{j+1}' + 2Y_{j-1}' - Y_{j-1}'))$$

Ergebnis:

$$Y_{j+1} = C_{j+1} + 9/121 (P_{j+1} - C_{j+1})$$

Der Fehler wird bestimmt über Gl.A.3

$$A.3 \quad \delta = \sum_i a_i |P_{j+1,i} - C_{j+1,i}|$$

wobei die $P_{j+1,i}$ und $C_{j+1,i}$ Elemente der Vektoren P_{j+1} und C_{j+1} sind. Die a_i ($i=1,2,\dots,n$) sind Gewichtsparameter, die in der Prozedur festgelegt werden.

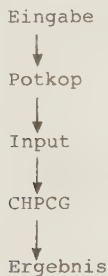
Ist δ größer als der vorgegebene Fehler ϵ so wird die Schrittweite halbiert. Tritt der umgekehrte Fall ein, so wird die Schrittweite wieder vergrößert. Sie kann maximal gleich der extern vorgegebenen Schrittweite werden, um andere Prozeduren, die ebenfalls von ihr abhängen, nicht in ihrer Genauigkeit zu beeinflussen.

Wie eingangs erwähnt ist das MHPC-Verfahren nicht selbststartend und es müssen außer dem Anfangspunkt noch drei weitere Punkte bekannt sein um das Integrationsverfahren zu starten. Sie werden mit einem speziellen Runge-Kutta-Verfahren berechnet, das von Ralston et.al entwickelt wurde/RaWi60/. Die Genauigkeit der Startwerte ist äußerst wichtig und deshalb werden sie nochmals über ein weiteres Iterationsverfahren verbessert. Die Beschreibung der Verfahren findet man in der Programmbeschreibung des MHPC /IBM/.

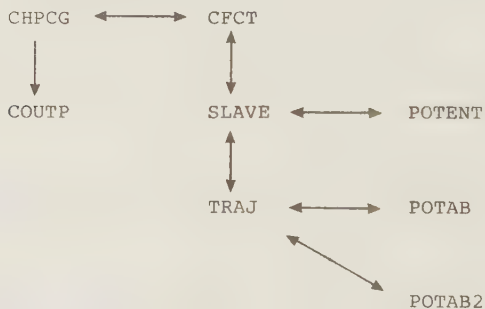
Die numerische Behandlung des Streuprozesses erzwingt eine Transformation der Zeitskala. Der Zeitpunkt $t=-\infty$ ist gleichbedeutend mit dem Beginn des Stoßes. Nun wird aus der Zeit t durch Lösen der klassischen Bewegungsgleichungen ein Abstand $R(t)$ berechnet und für $t=0$ muß daher $R(t=0)=R_{\min}$ sein. Dies würde bei der numerischen Rechnung nur sehr schwer

in Übereinstimmung zu bekommen sein und man setzt daher den Beginn des Stoßprozesses für den MHPC auf $t=0$ fest. Entsprechend müssen auch die Anfangsbedingungen definiert werden.

Schema des verwendeten Programms. Das Programm ist in Fortran geschrieben.



Die Subroutine CHPCG, die den MHPC enthält, benötigt weitere Subroutines, die im nächsten Schema dargestellt sind



Erläuterung der einzelnen Programmteile:

Eingabe:

Im Programmteil Eingabe werden die für den Streuprozess wichtigen Größen besetzt. Das sind:

Stoßgeschwindigkeit

Stoßparameterbereich für den das System gelöst wird ($b_{\max}$ und $b_{\min}$)

Schrittweite des Stoßparameters Δb

Integrationsgrenze $R_{\max}$

Diverse Steuerparameter

POTKOP:

In der Routine POTKOP werden die benutzten Potentiale berechnet und ausgedruckt.

INPUT:

In INPUT werden die Anfangsbedingungen festgelegt, die im MHPC zur Lösung des Gleichungssystems benötigt werden:

Anfangsbedingungen zb. $Y_1(t=0)=1$

$Y_n(t=0)=0$ für alle $n \neq 0$

Schrittweite Δt der Zeit

Fehlergrenze ϵ

Diverse andere Steuerparameter

CHPCG:

Die Routine CHPCG umfaßt das beschriebene MHPC-Verfahren. Sie benötigt eine Reihe weiterer Unterprogramme:

CFCT:

Sie berechnet aus $Y_j(t_n)$ und $Y_j'(t_n)$ die rechten Seiten des Differentialgleichungssystems 3.28. Dazu benötigt CFCT die momentan aktuellen Kopplungen.

SLAVE

Hier werden die momentan aktuellen Kopplungen, die Potentiale am Ort der aktuellen Trajektorie $\vec{R}(t_n)$ und die Phasendifferenz

$$\Delta \Phi = \int_{-\infty}^{\dagger} (U_{\pi\pi} - U_{\sigma\sigma}) dt' \quad \text{berechnet.}$$

TRAJ

Diese Routine löst die klassischen Bewegungsgleichungen 3.22 und man erhält den in SLAVE benötigten momentanen $R(t_n)$ Wert. Die Integration der Bewegungsgleichungen wird mit einem klassischen Runge-Kutta-Verfahren durchgeführt man kann wählen zwischen einer geraden und einer gekrümmten Trajektorie. Bei der gekrümmten Trajektorie sind wieder zwei Fälle möglich

- i) Die Trajektorie wird nur auf einem Potential gerechnet.
 - ii) Man läuft auf einem Potential ein (normalerweise der Grundzustand) und auf einem anderen Potential aus (angeregter Zustand), wobei die unterschiedlichen Stoßenergien zu berücksichtigen sind (inelastischer Stoß).
- Zusätzlich wird der Ablenkwinkel bestimmt und nach Ablauf der vollständigen Integration von $-R_{\max}$ bis $+R_{\max}$ erhält man den Streuwinkel für einen Stoßparameter.

POTENT

Berechnung des Grundzustandspotentials.

POTAB

In POTAB wird die Ableitung des Grundzustandes berechnet.

POTAB2

Berechnung der Ableitung des angeregten Potentials.

COUTP

Es wird die Lösungen der Differentialgleichungen ausgegeben und die Routine CHPCG beim Auftreten bestimmter Randbedingungen gestoppt (z.B. $R(t_n) > R_{\max}$).

Damit sind die Routinen, die zu CHPCG gehören, abgehandelt.

Im Hauptprogramm folgt noch die Ausgabe der Ergebnisse.

ERGEBNIS

Zum Schluß werden im Hauptprogramm aus den erhaltenen komplexen Amplituden die Übergangswahrscheinlichkeiten $P(b)$, der Alignmentwinkel γ und der Asymetrieparameter P_3 im molekularen System berechnet. Durch Rücktransformation der Amplituden in das atomare System erhält man obige Größen in raumfesten Koordinaten.

Die Rechnungen wurden auf einer CRAY-1M durchgeführt. Zur Berechnung einer vollständigen Lösung eines 3-Zustandssystems für einen Stoßparameter und eine Energie benötigt man ca. 50 s auf der CRAY-1.

Literaturverzeichnis:

- /Apr/ R.Alan privat communication
- /AK84/ R.Alan,H.J.Korsch,(1984) to be published
- /AN83/ T.Andersen,H.-P.Neitzke,Book of Invited Papers
XIII International Conference on the Phys.of
Electr.and Atom. Coll.,North-Holland,
Amsterdam 1983
- /Bat62/ D.R.Bates,R.McCaroll,Adv.Phys.11(1962),39
- /Bard76/. J.N.Bardsley,B.R.Junker,D.W.Norcross,
Chem.Phys.Lett.37(1976)502
- /BHMMSS84/ A.Bähring.,I.V.Hertel,E.Meyer,W.Meyer,N.Spies,
H.Schmidt;J.Phys.B.18(1984) in press
- /BMH83/ A.Bähring,E.Meyer,I.V.Hertel,Book of Abstracts,
XIII International Conference on the Phys. of
Electr.and Atom. Coll.,North-Holland,
Amsterdam 1983
- /BHMS84/ A.Bähring,I.V.Hertel,E.Meyer,H.Schmidt
submitted to J.Phys.B(1984)
- /BS68/ D.M.Brink,G.R.Satchler,"Angular Momentum"
Oxford:Clarendon 1968
- /Cer76/ C.J.Cerjan,K.K.Docken,A.Dalgarno
Chem.Phys.Lett.38(1976)401
- /Cern/ Softwarebibliothek Cern
- /Child/ M.S.Child "Molecular Collision Theory"
Academic Press,London(1974)

- /EASK73/ M.Eminyan,K.MacAdams,J.Slevin,H.Kleinpoppen
Phys.Rev.Lett.31(1973)576
- /Eu84/ B.C.Eu "Semiclassical Theory of Molecular
Scattering", Springer Berlin Heidelberg 1984
- /Fi77/ A.Fischer, Diplomarbeit, Universität
Kaiserslautern 1977
- /FiH82/ A.Fischer,I.V.Hertel, Z.Phys.A 304(1982)1
- /Gold/ H.Goldstein "Klassische Mechanik", Akademische
Verlagsanstalt Frankfurt/Main 1974
- /Gros81/ J.Grosser,J.Phys.B 14(1981)1449
- /H75/ Hormes, Dissertation, Universität
Bonn 1975
- /Hab75/ Habitz, Dissertation, Universität
Bonn 1975
- /HBMS84/ I.V.Hertel,A.Bähring,E.Meyer,H.Schmidt
1984 to be published
- /HeH82/ H.W.Hermann,I.V.Hertel,Comm.Atom.Mol.Phys.12
(1982)61-84,127-148
- /HeH82b/ H.W.Hermann,I.V.Hertel,Z.Phys.A307(1982)89
- /Her79/ H.W.Hermann, Dissertation, Universität
Kaiserslautern 1979
- /HMWK83/ T.Hall,B.Mener,W.Wehrle,V.Kempter,Book of
Invited Papers XIII.International Conf.on the
Phys.of Electr.and Atom. Coll.,North-Holland
Amsterdam 1983

- /HR68/ O.Heinz,T.T.Reaves,Rev.Sci.Instr.39(1968)1229
- /HS74/ I.V.Hertel,W.Stoll,J.Phys.B 7(1974)570
- /HS78/ I.V.Hertel,W.Stoll,Adv.At.Mol.Phys.13(1978)113
- /IBM/ IBM Scientific Software
- /KR79/ D.D.Konowalow,M.E.Rosenkranz,Chem.Phys.Lett.61(1979)489
- /Mag54/ W.Magnus,Commun.Pure Appl.Math.7(1954)649
- /MH74/ J.Macek,I.V.Hertel,J.Phys.B 7(1974)2173
- /MJ71/ J.Macek,D.Jaecks,Phys.Rev.A 4(1971)2288
- /Mott31/ N.F.Mott,Proc.Camb.Phil.Soc.Math.Phys.Sci.27(1931)552
- /MR82/ M.Macias,A.Riera,Phys.Rep.90(1982)301
- /MRS83/ R.Montagnani,P.Riani,O.Salvetti,Chem.Phys.Lett.102(1983)571
- /MS83/ A.Henriet,F.Masnow-Seeuws,Chem.Phys.Lett.101(1983)535
- /Mü84/ W.Müller,L.Flesh,W.Meyer,J.Chem.Phys.(1984) in press
- /NS79/ A.V.Nemukhin,N.F.Stepanov,Chem.Phys.Lett.60(1979)421
- /O'M71/ T.F.O'Malley,Adv.At.Mol.Phys.7(1971)223
- /PS57/ I.C.Percival,M.J.Seaton,Proc.Camb.Phil.Soc,53(1957)654

- /PS58/ I.C.Percival,M.J.Seaton,Proc.Phys.Soc.A
251(1958)113
- /RaWi60/ "Mathematical Methods for Digital Computers"
Wiley, New York/London 1960
- /RJTH82/ W.Reiland,G.Jamieson,H.-U.Tittes.I.V.Hertel,
Z.Phys.A305(1982)
- /S72/ R.Shakeshaft,J.Phys.B 5(1972)559
- /S74/ W.Stoll,Dissertation,Universität
Kaiserslautern 1974
- /Sa80/ A.Salin,Comm.Atom.Mol.Phys.9(1980)165
- /Smith69/ F.T.Smith,Phys.Rev.179(1969)111
- /Sp82/ N.Spies, Diplomarbeit, Universität
Kaiserslautern 1982
- /St77/ W.Sticht, Diplomarbeit, Universität
Kaiserslautern 1977
- /Tay72/ J.R.Taylor "Scattering Theory: The Quantum
Theory of Nonrelativistic Collisions" Willey,
New York 1972
- /TD78/ W.R.Thorson,J.B.Delos,Phys,Rev.A 18(1978)301
- /Val78/ A.Valence,J.Chem.Phys.69(1978)355
- /v.B84/ F.v.Busch,J.Hormes,D.Liesen
J.Phys.B 17(1984)783
- /WHR69/ J.D.Weeks,A.Hazi,S.A.Rice,Adv.Chem.Phys.15
(1969)283

LEBENS LAUF:

Name: Enno Meyer

geb.: 10.2.1953 in Frankenthal/Pfalz

Eltern: Enno Meyer
Ruth Meyer, geb. Groutars

Familienstand: verheiratet seit 1979 mit Edith Schmid-Meyer, geb.
Schmid

Ausbildung: 1959 - 1963: Besuch der Volksschule Frankenthal
1963 - 1971: Besuch des staatlichen Neusprachlichen und
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Gymnasiums
Frankenthal/Pfalz
Abitur: 1971

Okt. 1971 - März 1978: Studium der Fächer Physik und
Mathematik an der Universität Kaiserslautern
Zwischenprüfung: 1974

Juni 1976 - März 1978: Staatsexamensarbeit in der
Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Hertel

März 1978: Staatsexamen

Thema: Aufbau eines Praktikumversuchs zur Mie-Streuung

April 1978 - Dez. 1978: Wiss. Mitarbeiter an der
Universität Kaiserslautern bei Prof. Dr. Hertel

Seit Jan. 1979 Wiss. Mitarbeiter an der Freien Universität
Berlin in derselben Arbeitsgruppe

Juli 1984 Abgabe der Dissertation

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben herzlichst bedanken. Besonderen Dank gebührt Dr. H. Schmidt für die Betreuung und Unterstützung der Arbeit. Bei Dipl. Phys. A. Bähring möchte ich mich herzlich bedanken. Mit ihm zusammen sind ein Großteil der Messungen entstanden.

Bedanken möchte ich mich auch bei Prof. Dr. Kempter für die Überlassung des numerischen Verfahrens und Dr. Robert Alan für theoretische Diskussionen. Mein besonderer Dank gilt Prof. Dr. I.V. Hertel für die Aufgabenstellung und sein reges Interesse am Verlauf dieser Arbeit.

D. GRÄBNER

Dissertations- u. Offsetdruckerei

Gotenstraße 3

8602 Altendorf bei Bamberg

Telefon 09545 / 8791

